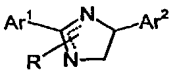




PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation ⁷ : C07D 233/20, 233/22, A01N 43/50		A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/03995 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 27. Januar 2000 (27.01.00)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP99/04682 (22) Internationales Anmeldedatum: 6. Juli 1999 (06.07.99) (30) Prioritätsdaten: 198 31 987.8 16. Juli 1998 (16.07.98) DE (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE). (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): GRAFF, Alan [DE/DE]; Gerstenkamp 19, D-51061 Köln (DE). PLANT, Andrew [GB/DE]; Walter-Flex-Strasse 20, D-51373 Leverkusen (DE). ERDELEN, Christoph [DE/DE]; Unterbüscherhof 15, D-42799 Leichlingen (DE). MENCKE, Norbert [DE/DE]; Grundermühle 2, D-51381 Leverkusen (DE). TURBERG, Andreas [DE/DE]; Sinterstrasse 86, D-42781 Haan (DE). (74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE- SELLSCHAFT; D-51386 Leverkusen (DE).		(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG). Veröffentlicht Mit internationalem Recherchenbericht.	
(54) Title: DIPHENYLIMIDAZOLINES (54) Bezeichnung: DIPHENYLIMIDAZOLINE <div style="text-align: center;">(I)</div> (57) Abstract The invention relates to novel diphenylimidazolines of formula (I), wherein Ar ¹ , Ar ² and R have the meaning mentioned in the description. The invention also relates to several methods of production thereof and to their use in controlling animal pests. (57) Zusammenfassung Die Erfindung betrifft neue Diphenylimidazoline der Formel (I), in welcher Ar ¹ , Ar ² und R die in der Beschreibung genannten Bedeutungen haben, mehrere Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen.			

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshjan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland			TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	NZ	Neuseeland		
CM	Kamerun			PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

Diphenylimidazoline

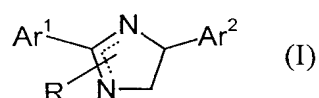
Die Erfindung betrifft neue Diphenylimidazoline, Verfahren zu ihrer Herstellung und
5 ihre Verwendung zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen.

Bisher sind nur wenige gegebenenfalls am Stickstoff und in den Arylresten substituierte 2,4-Diaryl-4,5-dihydroimidazole bekannt. Die Stammverbindung, 2,4-Diphenyl-4,5-dihydro-1H-imidazol, wurde bereits im 19. Jahrhundert synthetisiert
10 (Chem. Ber. 28, 3172 (1895)). Weiterhin beschrieben sind in Tetrahedron 29, 3137 (1973) das *N*-Methoxycarbamat, in SU 466231 (zitiert in C.A. 83:79277) das *N*-Cyclohexyl-Derivat, in der EP-A 10 852 das *N*-Hydroxyethylderivat und schließlich in Synlett 10, 1031 (1995) das in beiden Phenylringen substituierte 2-para-Methyl-4-para-methoxy-Derivat sowie die entsprechenden monosubstituierten Verbindungen.
15 Schließlich sind zwei formal vom tautomeren 3H-Imidazol abgeleitete Verbindungen, 5-(3,4-Dimethylphenyl)-1-methyl-2-phenyl-4,5-dihydro-1H-imidazol in Pol. Ann. Univ. Mariae Curie-Sklodowska, Sect. D 36, 111 (1981) und 2-Hydroxyphenyl-1-methyl-5-phenyl-4,5-dihydro-1H-imidazol in Proc. Indian Acad. Sci., Chem. Sci. 104, 383 (1992) beschrieben. Ohne konkrete Beispiele sind Diphenylimidazoline in weiteren Patentanmeldungen beschrieben: BE 695 703; BE 839 503; BE 846 373; DD 155296 (zitiert in C.A. 98:57781); DOS 25 12 513; DOS 27 38 270; DOS 29 46 085; DOS 32 04 333; DOS 32 11 301; DOS 32 36 598; DOS 36 10 758; DOS 40 17 801; DOS 42 35 590; EP-A 1 468; EP-A1 516 982; EP-A2 617 069; FR-A1 2629092; JP-A 56 90982 (zitiert in C.A. 96:147323); JP-A 56 90983 (zitiert in C.A. 96:147322); JP-A 58 152085 (zitiert in C.A. 100:213975); JP-A 59 116660 (zitiert in C.A. 102:36786); JP-A2 62 195369 (zitiert in C.A. 108:167467) JP-A 04 180944 (zitiert in C.A. 118:23600); US 3,202,674; US 4,066,625; US 4,661,600; WO 93/04045; WO 93/04046; in beiden Phenylringen substituierte Derivate sind in DOS 27 01 372 (nur Methyl- oder Ethylsubstituenten),
25 DOS 32 17 875 (falls man unter C₆-C₁₅-Arylrest beispielsweise TolyI oder XylyI versteht), den US 4,389,371 sowie US 4,452,758 (ausschließlich Alkalisalze von *N*-

(alkoxy)-alkyl-carbonsäuren) und DOS 27 44 782 sowie EP-A1 596 326 (spezieller Heterocyclymethyl-Substituent) beschrieben.

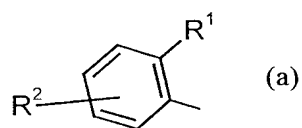
Über die Verwendung von 2,4-Diaryl-4,5-dihydroimidazolen als Schädlingsbekämpfungsmittel ist bisher nichts bekannt.

Es wurden nun neue Diarylimidazoline der Formel (I)



gefunden, in welcher

Ar¹ für die Gruppierung (a)



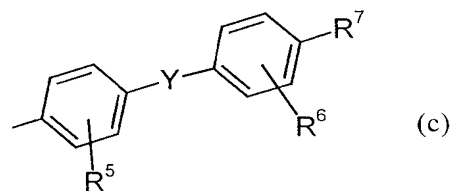
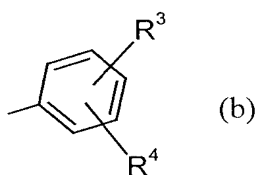
steht, in der

R¹ für Halogen, Alkyl, Alkoxy oder Halogenalkoxy steht und

R² für Wasserstoff, Halogen, Alkyl oder Alkoxy steht,

20

Ar² für die Gruppierungen (b) oder (c)



steht, in denen

R^3 , R^4 , R^5 und R^6 unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Halogen, Alkyl, Alkoxy, Halogenalkyl oder Halogenalkylthio stehen,

5

R^7 für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Halogenalkyl, Halogenalkoxy oder Halogenalkylthio steht und

Y für eine direkte Bindung, Sauerstoff, Methylen, -O-CH₂- oder -CH₂O- steht und

10

R für Cyano, Alkoxyalkyl, Formyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl oder -C(X)-NHR⁸ steht, worin

15

X für Sauerstoff oder Schwefel steht und

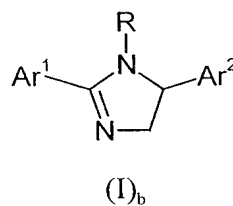
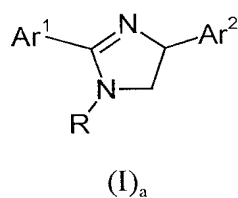
R⁸ für Wasserstoff oder Alkyl steht,

Halogen steht dabei für F, Cl, Br und Iod, insbesondere für F, Cl und Br.

20

Die Verbindungen der Formel (I) umfassen *N*-substituierte Derivate der beiden tautomeren Formen der dem Imidazolin zugrunde liegenden cyclischen Imidat-Funktion. Diese sind 1H-4,5-Dihydroimidazole der Formel (I)_a und 3H-4,5-Dihydroimidazole der Formel (I)_b, was durch die gestrichelte Linie in der Formel (I) zum Ausdruck gebracht werden soll.

25

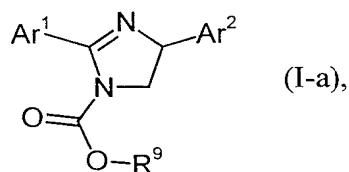


Die Verbindungen der Formeln (I)_a und (I)_b können sowohl als Gemische als auch in Form der reinen Isomere vorliegen und weiterhin, auch in Abhängigkeit von der Art der Substituenten, als geometrische und/oder optische Isomere oder Isomerengemische in unterschiedlicher Zusammensetzung vorliegen. Diese Isomere können gegebenenfalls in üblicher Art und Weise getrennt werden. Die Erfindung betrifft sowohl die reinen Isomere als auch deren Gemische.

Weiterhin wurde gefunden, daß man die neuen Verbindungen der Formel (I) nach einem der im folgenden beschriebenen Verfahren erhält.

10

A) Diphenylimidazoline der Formel (I-a)



15

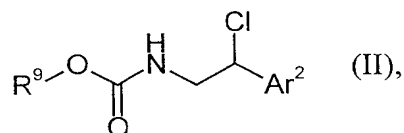
in welcher

Ar¹ und Ar² die oben angegebenen Bedeutungen haben und

R⁹ für C₁-C₄-Alkyl steht,

20

lassen sich herstellen, indem man β-Chlorcarbamate der Formel (II)



in welcher

25

Ar² und R⁹ die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit Benzonitrilen der Formel (III),



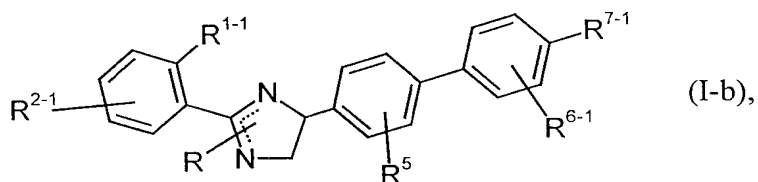
5 in welcher

Ar^1 die oben angegebenen Bedeutungen hat,

in Gegenwart von Schwefelsäure kondensiert,

10

B) Diphenylimidazoline der Formel (I-b)



in welcher

15

R die oben angegebenen Bedeutungen hat und

R^{1-1} für Fluor, Chlor, Alkyl, Alkoxy oder Halogenalkoxy steht,

20

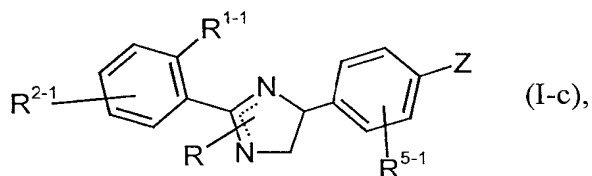
R^{2-1} für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Alkyl oder Alkoxy steht,

R^{5-1} und R^{6-1} unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Alkyl, Alkoxy, Halogenalkyl oder Halogenalkylthio stehen und

25

R^{7-1} für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Cyano, Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Halogenalkyl oder Halogenalkylthio steht,

lassen sich herstellen, indem man Halogenverbindungen der Formel (I-c)



in welcher

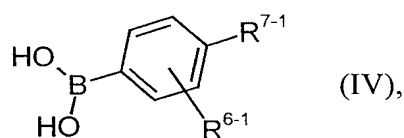
5

R, R¹⁻¹, R²⁻¹ und R⁵⁻¹ die oben angegebenen Bedeutungen haben und

Z für Brom oder Iod steht,

10

mit Boronsäuren der Formel (IV)



in welcher

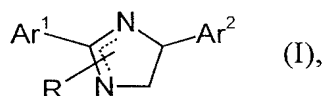
15

R⁶⁻¹ und R⁷⁻¹ die oben angegebenen Bedeutungen haben,

in Gegenwart eines Katalysators und gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels kuppelt,

20

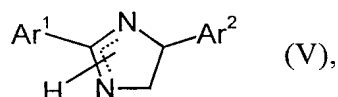
C) Diphenylimidazoline der Formel (I)



in welcher

Ar¹, Ar² und R die oben angegebenen Bedeutungen haben,

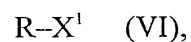
lassen sich herstellen, indem man am Stickstoff nicht substituierte Diphenyl-
imidazoline der Formel (V)



in welcher

Ar¹ und Ar² die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit Verbindungen der Formel (VI)



in welcher

R die oben angegebenen Bedeutungen hat und

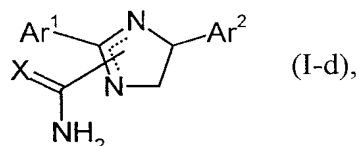
X¹ für eine in Abhängigkeit vom Rest R geeignete Abgangsgruppe wie
-Cl, -Br, -OSO₂OR¹⁰ oder -OR¹⁰ steht,

worin

R¹⁰ für Alkyl oder Aryl steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels kondensiert,

D) Diphenylimidazoline der Formel (I-d)

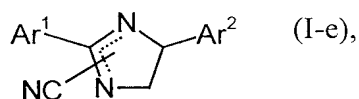


in welcher

5

Ar¹, Ar² und X die oben angegebenen Bedeutungen haben,

lassen sich herstellen, indem man Nitrile der Formel (I-e)



10

in welcher

Ar¹ und Ar² die oben angegebenen Bedeutungen haben,

15

mit Wasser oder Schwefelwasserstoff gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels umgesetzt.

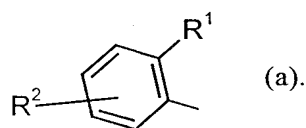
20

Weiterhin wurde gefunden, daß die Verbindungen der Formel (I) und deren biologisch wirksamen Salze zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen, insbesondere von Insekten, Spinnentieren und Nematoden geeignet sind.

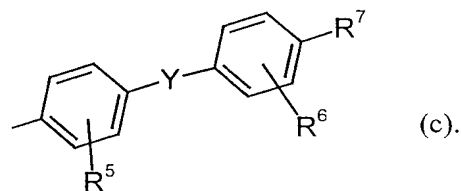
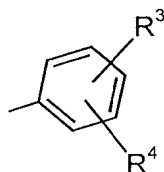
25

Die neuen Verbindungen sind durch die Formel (I) allgemein definiert. Bevorzugte Substituenten beziehungsweise Bereiche der in den oben und nachstehend erwähnten Formeln aufgeführten Reste werden im folgenden erläutert.

Ar¹ steht bevorzugt für die Gruppierung (a)



Ar² steht bevorzugt für die Gruppierungen (b) oder (c)



5 R steht bevorzugt für Cyano, C₁-C₄-Alkoxy-, C₁-C₄-alkyl, C₁-C₄-Alkylcarbonyl, C₁-C₄-Alkoxy carbonyl oder -C(X)-NHR⁸.

R¹ steht bevorzugt für Halogen, C₁-C₃-Alkyl, C₁-C₃-Alkoxy oder C₁-C₃-Halogenalkoxy.

10

R² steht bevorzugt für Wasserstoff, Halogen, C₁-C₃-Alkyl oder C₁-C₃-Alkoxy.

R³, R⁴, R⁵ und R⁶ stehen unabhängig voneinander jeweils bevorzugt für Wasserstoff, Halogen, C₁-C₁₂-Alkyl oder C₁-C₁₂-Alkoxy.

15

R⁷ steht bevorzugt für Wasserstoff, Halogen, Cyano, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkoxy oder C₁-C₄-Halogenalkylthio.

20

R⁸ steht bevorzugt für Wasserstoff oder C₁-C₄-Alkyl.

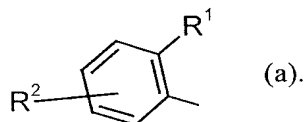
X steht bevorzugt für Sauerstoff oder Schwefel.

Y steht bevorzugt für eine direkte Bindung oder Sauerstoff.

25

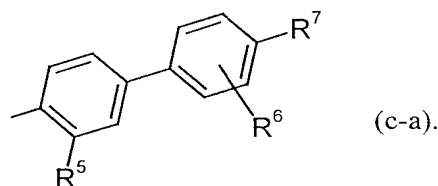
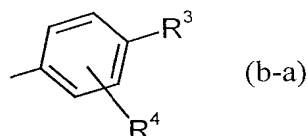
Halogen steht dabei bevorzugt für F, Cl, Br und Iod, insbesondere für F, Cl und Br.

Ar¹ steht besonders bevorzugt für die Gruppierung (a)



5

Ar² steht besonders bevorzugt für die Gruppierungen (b-a) oder (c-a)



10

R steht besonders bevorzugt für Cyano, C₁-C₃-Alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₁-C₃-Alkylcarbonyl, C₁-C₂-Alkoxycarbonyl oder -C(X)-NHR⁸.

R¹ steht besonders bevorzugt für Fluor, Chlor, Brom, Iod, C₁-C₃-Alkyl und C₁-C₃-Alkoxy.

15

R² steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, C₁-C₃-Alkyl oder C₁-C₃-Alkoxy.

R³, R⁴, R⁵ und R⁶ stehen unabhängig voneinander jeweils besonders bevorzugt für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, C₁-C₆-Alkyl oder C₁-C₆-Alkoxy.

20

R⁷ steht besonders bevorzugt für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, durch Fluor oder Chlor substituiertes C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkylthio.

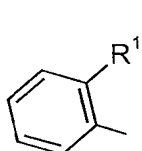
25

R⁸ steht besonders bevorzugt für Wasserstoff oder C₁-C₄-Alkyl.

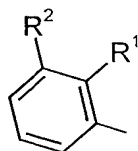
X steht besonders bevorzugt für Sauerstoff oder Schwefel.

Ar¹ steht ganz besonders bevorzugt für die Gruppierungen (a-1), (a-2) oder (a-3)

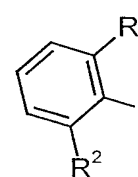
5



(a-1)



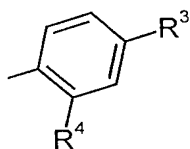
(a-2)



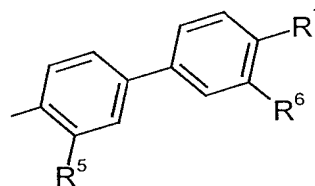
(a-3).

Ar² steht ganz besonders bevorzugt für die Gruppierungen (b-b) oder (c-b)

10



(b-b)



(c-b).

R steht ganz besonders bevorzugt für Cyano, Ethoxymethyl, Acetyl, Propionyl, Butyryl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl oder -C(X)-NHR⁸.

15

R¹ steht ganz besonders bevorzugt für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Methoxy oder Ethoxy.

R² steht ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Methoxy oder Ethoxy.

20

R³, R⁴, R⁵ und R⁶ stehen unabhängig voneinander jeweils ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, Isobutyl, sec.-Butyl, tert.-Butyl, Pentyl, Hexyl, Methoxy, Ethoxy, n-

Propoxy, Isopropoxy, n-Butoxy, Isobutoxy, sec.-Butoxy, tert.-Butoxy, Pentyl-
oxy oder Hexyloxy.

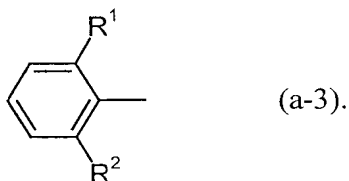
- 5 R⁷ steht ganz besonders bevorzugt für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n-
Propyl, Isopropyl, n-Butyl, Isobutyl, sec.-Butyl, tert.-Butyl, Methoxy,
Ethoxy, n-Propoxy, Isopropoxy, n-Butoxy, Isobutoxy, sec.-Butoxy, tert.-
Butoxy, Methylthio, Ethylthio, n-Propylthio, Isopropylthio, Difluormethyl,
Trifluormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, Difluormethoxy, Trifluor-
methoxy, Chlordifluormethoxy, 1,1-Difluorethoxy, 1,1,2-Trifluorethoxy,
10 1,1,2,2-Tetrafluorethoxy, 2-Chlor-1,1,2-trifluorethoxy, 2,2,2-Trichlor-1,1-di-
fluorethoxy, Pentafluorethoxy, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Chlor-
difluormethylthio, 1,1-Difluorethylthio, 1,1,2-Trifluorethylthio, 2,2,2-Tri-
fluorethylthio, 1,1,2,2-Tetrafluorethylthio, 2-Chlor-1,1,2-trifluorethylthio,
2,2,2-Trichlor-1,1-difluorethylthio oder Pentafluorethylthio.

15

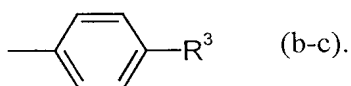
R⁸ steht ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff, Methyl oder Ethyl.

X steht ganz besonders bevorzugt für Sauerstoff oder Schwefel.

- 20 Ar¹ steht insbesondere ganz besonders bevorzugt für die Gruppierung (a-3)



Ar² steht insbesondere ganz besonders bevorzugt für die Gruppierung (b-c)

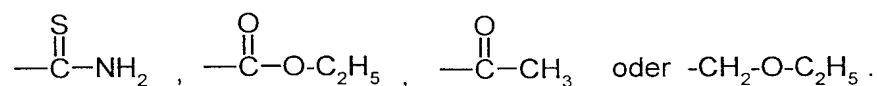


25

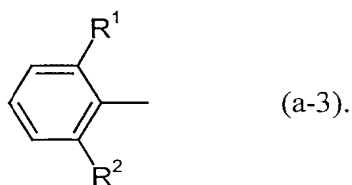
R^1 und R^2 sind gleich oder verschieden und stehen insbesondere ganz besonders bevorzugt für Wasserstoff, F, Cl, CH_3 oder Ethyl, wobei R^1 und R^2 nicht gleichzeitig für Wasserstoff stehen.

5 R^3 steht insbesondere ganz besonders bevorzugt für Brom, substituiertes Phenyl oder Phenoxy, als Substituenten kommen dabei $-\text{OCF}_3$, $-\text{SCF}_3$ oder t-Butyl in Frage.

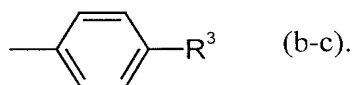
10 R steht insbesondere ganz besonders bevorzugt für Methyl, Ethyl, Propyl, i-Propyl, Cyano,



15 Ar^1 steht ganz speziell besonders bevorzugt für die Gruppierung (a-3)



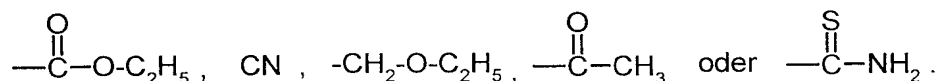
Ar^2 steht ganz speziell besonders bevorzugt für die Gruppierung (b-c)



20 R^1 und R^2 sind gleich oder verschieden und stehen ganz speziell besonders bevorzugt für F, Cl und Wasserstoff, wobei R^1 und R^2 nicht gleichzeitig für Wasserstoff stehen.

25 R^3 steht ganz speziell besonders bevorzugt für Brom oder 4-Trifluor-methoxyphenyl.

R steht ganz speziell besonders bevorzugt für



5

Die oben aufgeführten allgemeinen oder in Vorzugsbereichen aufgeführten Restdefinitionen bzw. Erläuterungen können untereinander, also auch zwischen den jeweiligen Bereichen und Vorzugsbereichen beliebig kombiniert werden. Sie gelten für die Endprodukte sowie für die Vor- und Zwischenprodukte entsprechend.

10

Erfindungsgemäß bevorzugt werden die Verbindungen der Formel (I), in welchen eine Kombination der vorstehend als bevorzugt (vorzugsweise) aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

15

Erfindungsgemäß besonders bevorzugt werden die Verbindungen der Formel (I), in welchen eine Kombination der vorstehend als besonders bevorzugt aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

20

Erfindungsgemäß ganz besonders bevorzugt werden die Verbindungen der Formel (I), in welchen eine Kombination der vorstehend als ganz besonders bevorzugt aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

25

Erfindungsgemäß insbesondere ganz besonders bevorzugt werden die Verbindungen der Formel (I), in welchen eine Kombination der vorstehend als insbesondere ganz besonders bevorzugt aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

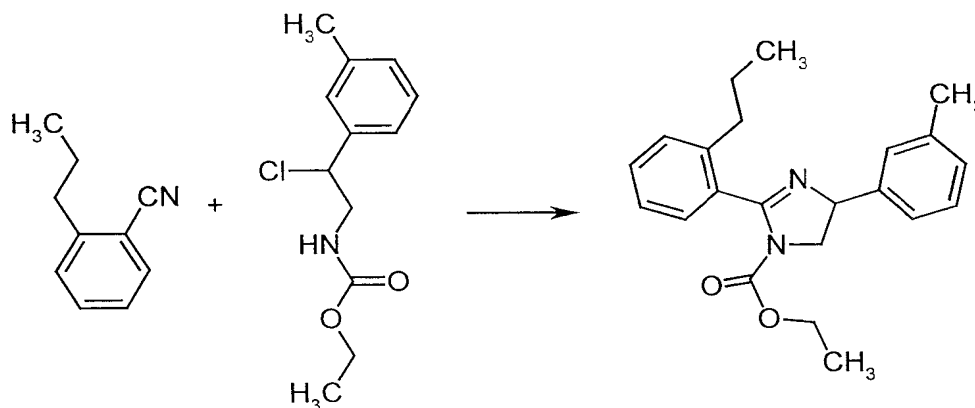
30

Erfindungsgemäß ganz speziell besonders bevorzugt werden die Verbindungen der Formel (I), in welchen eine Kombination der vorstehend als ganz speziell besonders bevorzugt aufgeführten Bedeutungen vorliegt.

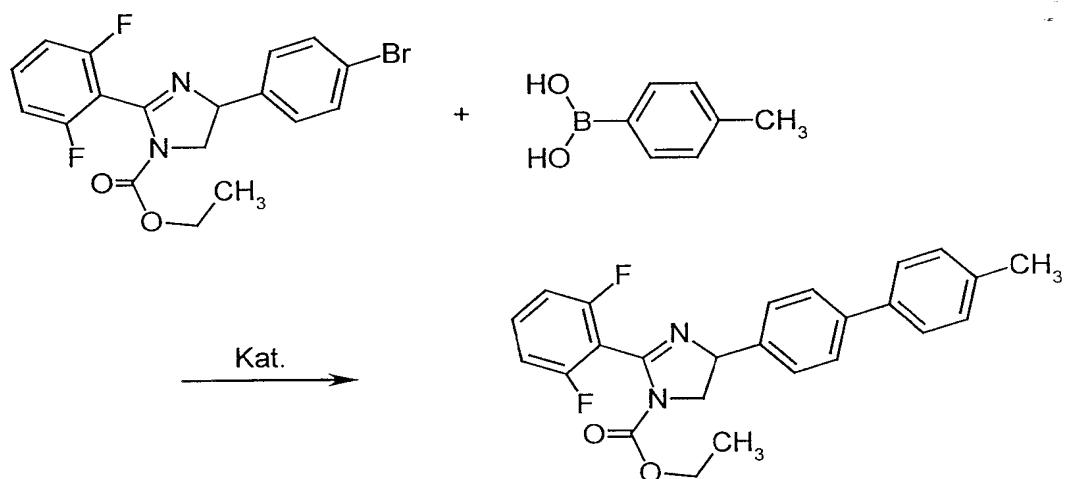
Gesättigte oder ungesättigte Kohlenwasserstoffreste wie Alkyl können, auch in Verbindung mit Heteroatomen, wie z.B. in Alkoxy, soweit möglich, jeweils geradkettig oder verzweigt sein.

- 5 Gegebenenfalls substituierte Reste können einfach oder mehrfach substituiert sein, wobei bei Mehrfachsubstitutionen die Substituenten gleich oder verschieden sein können.

Verwendet man beispielsweise *N*-[2-Chlorethyl-2-(3-methylphenyl)]-carbamidsäure-
10 ethylester und 2-Propylbenzonitril als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (A) durch das folgende Formelschema wiedergegeben werden:

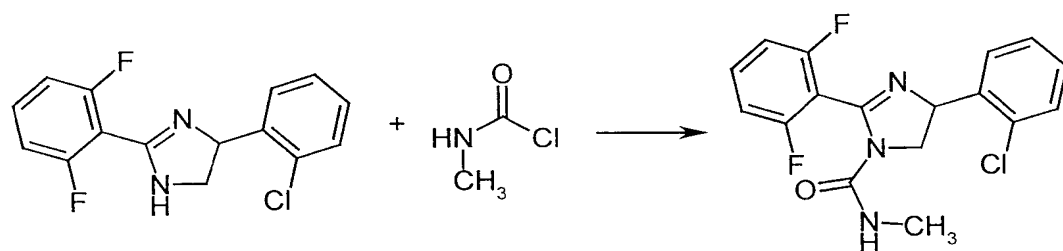


- 15 Verwendet man beispielsweise 4-(4-Bromphenyl)-1-ethoxycarbonyl-2-(2,6-difluorphenyl)-4,5-dihydro-1H-imidazol und 4-Methylphenylboronsäure als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (B) durch das folgende Formelschema wiedergegeben werden:



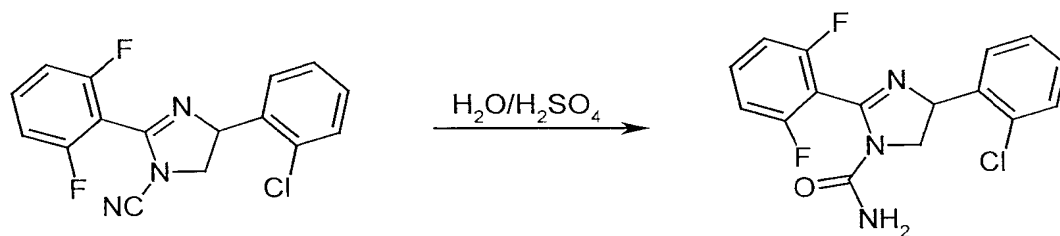
Verwendet man beispielsweise 4-(2-Chlorphenyl)-2-(2,6-difluorphenyl)-4,5-dihydro-1H-imidazol und *N*-Methylcarbamoylchlorid als Ausgangsstoffe, so kann der Reaktionsablauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (C) durch das folgende Formelschema wiedergegeben werden:

5



Setzt man beispielsweise 4-(2-Chlorphenyl)-1-cyano-2-(2,6-difluorphenyl)-4,5-dihydro-1H-imidazol als Ausgangsstoff mit wäßriger Schwefelsäure um, so kann der Reaktionsablauf des erfindungsgemäßen Verfahrens (D) durch das folgende Formelschema wiedergegeben werden:

10

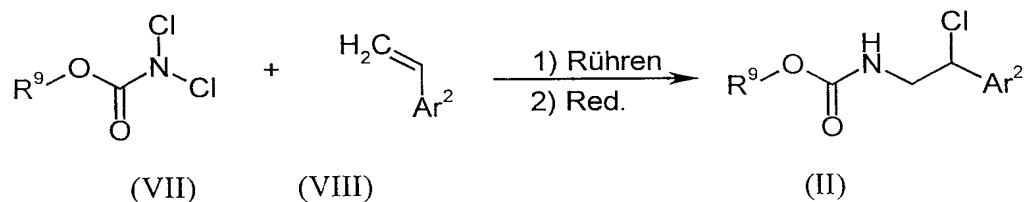


Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (A) benötigten β -Chlorcarbamate sind durch die Formel (II) allgemein definiert. In dieser Formel haben Ar^2 und R^9 vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der Diarylimidazoline der Formel (I) als bevorzugt genannt wurden.

5

β -Chlorcarbamate der Formel (II) lassen sich z.B. herstellen, indem man *N,N*-Dichlorcarbamidsäureethylester der Formel (VII) an Styrole der Formel (VIII) in einem dipolar-aprotischen Lösungsmittel wie beispielsweise Acetonitril bei Temperaturen zwischen -20 und $+20^\circ\text{C}$ addiert und den zunächst gebildeten *N*-Chlorcarbamidsäureester mit einem Reduktionsmittel wie beispielsweise Bisulfit-Lösung enthalogeniert gemäß folgendem Reaktionsschema:

10



15

N,N-Dichlorcarbamidsäureethylester der Formel (VII) sind zum Teil kommerziell erhältlich, literaturbekannt oder analog bekannten Verfahren zugänglich (siehe z.B. Thomas A. Foglia, Daniel Swern, J. Org. Chem. 31 (1966) 3625-3631; Ronald E. White, Peter Kovacic, J. Am. Chem. Soc. 97 (1975) 1180-1184).

20

Die weiterhin zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (A) benötigten Benzonitrile sind durch die Formel (III) allgemein definiert. In dieser Formel hat Ar^1 vorzugsweise diejenige Bedeutung, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der Diarylimidazoline der Formel (I) als bevorzugt genannt wurde.

25

Die Benzonitrile der Formel (III) und die Styrole der Formel (VIII) sind allgemein bekannte Verbindungen der organischen Chemie (siehe Lehrbücher der organischen Chemie wie z.B. Beyer-Walter, Lehrbuch der organischen Chemie, 21. Auflage, 1988) und zum Teil kommerziell erhältlich.

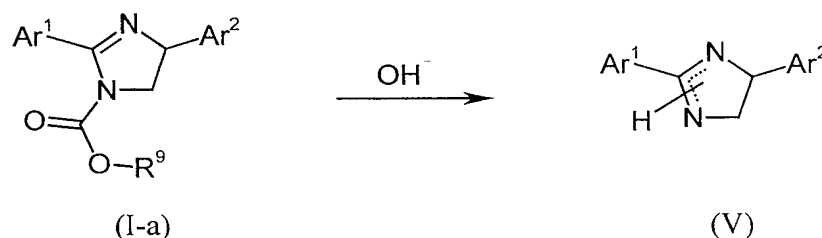
Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (B) benötigten Halogenverbindungen der Formel (I-c) sind eine Teilmenge der erfindungsgemäßen Verbindungen der allgemeinen Formel (I) und lassen sich beispielsweise nach den Verfahren (A), (C) oder (D) herstellen.

Die weiterhin zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (B) benötigten Boronsäuren sind durch die Formel (IV) allgemein definiert. In dieser Formel haben R^{6-1} und R^{7-1} vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der Diarylimidazoline der Formel (I) als bevorzugt genannt wurden, ausgenommen Brom und Iod.

Aromatische Boronsäure der Formel (IV) sind zum Teil kommerziell erhältlich, literaturbekannt oder können analog zu bekannten Methoden hergestellt werden [vgl. Chem. Rev. 45, 2457 (1995); Pure Appl. Chem. 66, 213 (1994)].

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (C) benötigten Diarylimidazoline sind durch die Formel (V) allgemein definiert. In dieser Formel haben Ar^1 und Ar^2 vorzugsweise diejenigen Bedeutungen, die bereits im Zusammenhang mit der Beschreibung der *N*-substituierten Diarylimidazoline der Formel (I) als bevorzugt genannt wurden. Die Diarylimidazoline der Formel (V) sind neu und ebenfalls Gegenstand der vorliegenden Anmeldung.

Diarylimidazoline der Formel (V) lassen sich z.B. herstellen, indem man Carbamate der Formel (I-a) mit Alkalimetallhydroxiden wie beispielsweise Kaliumhydroxid in Gegenwart eines Lösungsvermittlers wie beispielsweise Ethanol bei Temperaturen von 20 bis 120°C gemäß folgendem Reaktionsschema spaltet:



Die Carbamate der Formel (I-a) sind eine Teilmenge der erfindungsgemäßen Ver-
 bindungen der allgemeinen Formel (I) und lassen sich beispielsweise nach Verfahren
 5 (A) herstellen.

Die zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (D) benötigten *N*-Cyano-
 diphenylimidazoline der Formel (I-d) sind eine Teilmenge der erfindungsgemäßen
 10 Verbindungen der allgemeinen Formel (I) und lassen sich beispielsweise nach dem
 Verfahren (C) herstellen.

Das erfindungsgemäße Verfahren (A) wird in Gegenwart von (wäßriger) Schwefel-
 säure durchgeführt. Im allgemeinen arbeitet man bei Konzentrationen von 80 % bis
 15 100 %.

Die Reaktionstemperatur kann im Fall des erfindungsgemäßen Verfahrens (A) inner-
 halb eines größeren Bereiches variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei
 Temperaturen zwischen -20°C und +50°C, bevorzugt zwischen 0 und 30°C.

20

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (A) setzt man im allge-
 meinen pro Mol β -Chlorcarbammat der Formel (II) 0,5 bis 3 Mol, vorzugsweise 1 bis
 2 Mol Benzonitril der Formel (III) ein. Dabei wird die Säure in einem großen, bei-
 spielsweise 2 bis 20-fachen Überschuß eingesetzt, gegebenenfalls wird auch in der
 25 Säure als Lösungsmittel gearbeitet.

Zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (B) sind Palladium-Komplexe als Katalysator geeignet. Bevorzugte Katalysatoren sind beispielsweise Tetrakis(triphenylphosphin)palladium und Dichloro-bis(triphenylphosphin)palladium.

5 Als Säureakzeptor zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (B) kommen anorganische oder organische Basen in Frage. Hierzu gehören vorzugsweise Erdalkalimetall- oder Alkalimetallhydroxide, -acetate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natrium-, Kalium-, Barium- oder Ammoniumhydroxid, Natrium-, Kalium-, Calcium- oder Ammoniumacetat, Natrium-, Kalium- oder Ammoniumcarbonat, Natriumhydrogen- oder Kaliumhydrogencarbonat, Alkalifluoride, wie beispielsweise Cäsiumfluorid, sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, N-Methylpiperidin, N-Methylmorpholin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

15 Als Verdünnungsmittel zur Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (B) kommen Wasser, organische Lösungsmittel und Mischungen davon in Betracht. Beispielfhaft seien genannt: aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Petrolether, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin; halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Methylenchlorid, Chloroform, Tetrachlormethan, Dichlor-, Trichlorethan oder Tetrachlorethylen; Ether, wie beispielsweise Diethyl-, Diisopropyl-, Methyl-t-butyl-, Methyl-t-amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2-Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan, Diethylenglykoldimethylether oder Anisol; Alkohole, wie beispielsweise Methanol, Ethanol, n- oder iso-Propanol, n-, iso-, sek- oder tert-Butanol, Ethandiol, Propan-1,2-diol, Ethoxyethanol, Methoxyethanol, Diethylenglykolmonomethylether, Diethylenglykolmonoethylether; Wasser.

Die Reaktionstemperatur kann im Fall des erfindungsgemäßen Verfahrens (B) innerhalb eines größeren Bereiches variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei 30 Temperaturen zwischen 0°C und +140°C, bevorzugt zwischen 50°C und +100°C.

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (B) werden die Boronsäure der Formel (IV) und die Halogenverbindung der Formel (I-c) im molaren Verhältnis von 1:1 bis 3:1, vorzugsweise 1:1 bis 2:1 eingesetzt. Vom Katalysator setzt man im allgemeinen 0,005 bis 0,5 Mol, vorzugsweise 0,01 Mol bis 0,1 Mol pro Mol der Verbindung der Formel (I-c) ein. Die Base setzt man im allgemeinen im Überschuß ein.

Das erfindungsgemäße Verfahren (C) wird in Gegenwart eines geeigneten Reaktionshilfsmittels durchgeführt. Als solches kommen alle üblichen anorganischen oder organischen Basen in Frage. Hierzu gehören vorzugsweise Erdalkalimetall- oder Alkalimetallhydride, -hydroxide, -amide, -alkoholate, -acetate, -carbonate oder -hydrogencarbonate, wie beispielsweise Natriumhydrid, Natrium-, Kalium- oder Ammoniumhydroxid, Natriumamid, Lithiumdiisopropylamid, Natrium-methylat, Natrium-ethylat, Kalium-tert.-butylat, Natrium-, Kalium-, Calcium- oder Ammoniumacetat, Natrium-, Kalium- oder Ammoniumcarbonat, Natriumhydrogen- oder Kaliumhydrogencarbonat, sowie tertiäre Amine, wie Trimethylamin, Triethylamin, Tributylamin, N,N-Dimethylanilin, N,N-Dimethyl-benzylamin, Pyridin, N-Methylpiperidin, N-Methylmorpholin, N,N-Dimethylaminopyridin, Diazabicyclooctan (DABCO), Diazabicyclononen (DBN) oder Diazabicycloundecen (DBU).

Das erfindungsgemäße Verfahren (C) kann gegebenenfalls in Gegenwart eines geeigneten Phasentransferkatalysators durchgeführt werden. Als Beispiele für solche Katalysatoren seien genannt: Tetrabutylammoniumiodid, -bromid oder -chlorid, Tributylmethylphosphoniumbromid, Trimethyl-C₁₃/C₁₅-alkylammoniumchlorid oder -bromid, Dibenzyl dimethylammonium-methylsulfat, Dimethyl-C₁₂/C₁₄-alkylbenzylammoniumchlorid, 15-Krone-5, 18-Krone-6 oder Tris-[2-(2-methoxyethoxy)-ethyl]-amin.

Das erfindungsgemäße Verfahren (C) wird vorzugsweise in Gegenwart eines Verdünnungsmittels durchgeführt. Hierfür kommen Wasser, organische Lösungsmittel

und beliebige Mischungen davon in Betracht. Beispielfhaft seien genannt: aliphatische, alicyclische oder aromatische Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Petroleum, Hexan, Heptan, Cyclohexan, Methylcyclohexan, Benzol, Toluol, Xylol oder Decalin; halogenierte Kohlenwasserstoffe, wie beispielsweise Chlorbenzol, Dichlorbenzol, Methylenchlorid, Chloroform, Tetrachlormethan, Dichlor-, Trichlorethan oder Tetrachlorethylen; Ether, wie beispielsweise Diethyl-, Diisopropyl-, Methyl-t-butyl-, Methyl-t-amylether, Dioxan, Tetrahydrofuran, 1,2-Dimethoxyethan, 1,2-Diethoxyethan, Diethylenglykoldimethylether oder Anisol; Ketone, wie beispielsweise Aceton, Butanon, Methyl-isobutylketon oder Cyclohexanon; Nitrile, wie beispielsweise Acetonitril, Propionitril, n- oder iso-Butyronitril oder Benzonitril; Amide, wie beispielsweise Formamid, N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, N-Methylformanilid, N-Methylpyrrolidon oder Hexamethylphosphorsäuretriamid; N-Oxide wie N-Methylmorpholin-N-oxid; Ester wie beispielsweise Methyl-, Ethyl- oder Butylacetat; Sulfoxide, wie beispielsweise Dimethylsulfoxid; Sulfone, wie Sulfolan; Alkohole, wie beispielsweise Methanol, Ethanol, n- oder iso-Propanol, n-, iso-, sek- oder tert-Butanol, Ethandiol, Propan-1,2-diol, Ethoxyethanol, Methoxyethanol, Diethylenglykolmonomethylether, Diethylenglykolmonoethylether; Wasser.

Die Reaktionstemperatur kann im Fall des erfindungsgemäßen Verfahrens (C) innerhalb eines größeren Bereiches variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen -20°C und +100°C, bevorzugt zwischen 0°C und 60°C.

Bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (C) setzt man pro Mol Verbindung der Formel (V) im allgemeinen 1 bis 5 Mol Verbindung der Formel (VI) ein. Man kann jedoch auch, wenn es z.B. bei einem gasförmigen Reagenz zweckmäßig ist, einen größeren Überschuß der Verbindung der Formel (VI) verwenden.

Das erfindungsgemäße Verfahren (D) wird in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels durchgeführt. Bei Umsetzung mit Schwefelwasserstoff verwendet man beispielsweise tertiäre Amine, wie Pyridin oder Triethylamin. Diese können gleichzeitig auch als Verdünnungsmittel dienen. Bei Umsetzung mit Wasser verwendet man beispiels-

weise wäßrige Mineralsäuren wie Schwefelsäure oder Salzsäure, vorzugsweise 96 %-ige Schwefelsäure. Die Säuren können ebenfalls gleichzeitig als Verdünnungsmittel dienen.

- 5 Die Reaktionstemperatur kann im Fall des erfindungsgemäßen Verfahrens (D) innerhalb eines größeren Bereiches variiert werden. Im allgemeinen arbeitet man bei Temperaturen zwischen -20°C und +100°C, bevorzugt zwischen 0°C und 60°C.

- 10 Die bei der Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens (D) eingesetzte Menge Schwefelwasserstoff bzw. Wasser ist nicht kritisch. Pro Mol Nitril der Formel (I-e) wird mindestens ein Mol Schwefelwasserstoff bzw. Wasser benötigt. Es ist beim Schwefelwasserstoff vorteilhaft, einen größeren Überschuß einzusetzen.

- 15 Die Umsetzungen der erfindungsgemäßen Verfahren (A bis D) können bei Normaldruck oder unter erhöhtem Druck durchgeführt werden. Vorzugsweise wird bei Normaldruck gearbeitet. Die Reaktionsdurchführung, Aufarbeitung und Isolierung der Reaktionsprodukte erfolgt nach allgemein üblichen, bekannten Methoden. Die Endprodukte werden vorzugsweise durch Kristallisation, chromatographische Trennung oder durch Entfernung der flüchtigen Bestandteile, gegebenenfalls im
20 Vakuum, gereinigt (vergl. auch die Herstellungsbeispiele).

- Die Wirkstoffe eignen sich bei guter Pflanzenverträglichkeit und günstiger Warmblüttoxizität zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen, insbesondere Insekten, Spinnentieren und Nematoden, die in der Landwirtschaft, in Forsten, im Vorrats- und
25 Materialschutz sowie auf dem Hygienesektor vorkommen. Sie sind gegen normal sensible und resistente Arten sowie gegen alle oder einzelne Entwicklungsstadien wirksam. Zu den oben erwähnten Schädlingen gehören:

- 30 Aus der Ordnung der Isopoda z.B. *Oniscus asellus*, *Armadillidium vulgare*, *Porcellio scaber*.

Aus der Ordnung der Diplopoda z.B. *Blaniulus guttulatus*.

- Aus der Ordnung der Chilopoda z.B. *Geophilus carpophagus*, *Scutigera spec.*
- Aus der Ordnung der Symphyla z.B. *Scutigera immaculata*.
- Aus der Ordnung der Thysanura z.B. *Lepisma saccharina*.
- Aus der Ordnung der Collembola z.B. *Onychiurus armatus*.
- 5 Aus der Ordnung der Orthoptera z.B. *Blatta orientalis*, *Periplaneta americana*,
Leucophaea maderae, *Blattella germanica*, *Acheta domesticus*, *Gryllotalpa spp.*,
Locusta migratoria migratorioides, *Melanoplus differentialis*, *Schistocerca gregaria*.
- Aus der Ordnung der Dermaptera z.B. *Forficula auricularia*.
- Aus der Ordnung der Isoptera z.B. *Reticulitermes spp.*
- 10 Aus der Ordnung der Anoplura z.B. *Pediculus humanus corporis*, *Haematopinus*
spp., *Linognathus spp.*
- Aus der Ordnung der Mallophaga z.B. *Trichodectes spp.*, *Damalinae spp.*
- Aus der Ordnung der Thysanoptera z.B. *Hercinothrips femoralis*, *Thrips tabaci*.
- Aus der Ordnung der Heteroptera z.B. *Eurygaster spp.*, *Dysdercus intermedius*,
- 15 *Piesma quadrata*, *Cimex lectularius*, *Rhodnius prolixus*, *Triatoma spp.*
- Aus der Ordnung der Homoptera z.B. *Aleurodes brassicae*, *Bemisia tabaci*,
Trialeurodes vaporariorum, *Aphis gossypii*, *Brevicoryne brassicae*, *Cryptomyzus*
ribis, *Aphis fabae*, *Aphis pomi*, *Eriosoma lanigerum*, *Hyalopterus arundinis*,
Phylloxera vastatrix, *Pemphigus spp.*, *Macrosiphum avenae*, *Myzus spp.*, *Phorodon*
- 20 *humuli*, *Rhopalosiphum padi*, *Empoasca spp.*, *Euscelis bilobatus*, *Nephotettix*
cincticeps, *Lecanium corni*, *Saissetia oleae*, *Laodelphax striatellus*, *Nilaparvata*
lugens, *Aonidiella aurantii*, *Aspidiotus hederae*, *Pseudococcus spp.* *Psylla spp.*
- Aus der Ordnung der Lepidoptera z.B. *Pectinophora gossypiella*, *Bupalus piniarius*,
- 25 *Cheimatobia brumata*, *Lithocolletis blancardella*, *Hyponomeuta padella*, *Plutella*
maculipennis, *Malacosoma neustria*, *Euproctis chrysorrhoea*, *Lymantria spp.* *Buccu-*
latrix thurberiella, *Phyllocnistis citrella*, *Agrotis spp.*, *Euxoa spp.*, *Feltia spp.*, *Earias*
insulana, *Heliothis spp.*, *Laphygma exigua*, *Mamestra brassicae*, *Panolis flammea*,
Prodenia litura, *Spodoptera spp.*, *Trichoplusia ni*, *Carpocapsa pomonella*, *Pieris spp.*,
- 30 *Chilo spp.*, *Pyrausta nubilalis*, *Ephestia kuehniella*, *Galleria mellonella*, *Tineola*
bisselliella, *Tinea pellionella*, *Hofmannophila pseudospretella*, *Cacoecia podana*,

Capua reticulana, Choristoneura fumiferana, Clysia ambiguella, Homona magnanima, Tortrix viridana.

Aus der Ordnung der Coleoptera z.B. Anobium punctatum, Rhizopertha dominica, Bruchidius obtectus, Acanthoscelides obtectus, Hylotrupes bajulus, Agelastica alni,
 5 Leptinotarsa decemlineata, Phaeton cochleariae, Diabrotica spp., Psylliodes chrysocephala, Epilachna varivestis, Atomaria spp., Oryzaephilus surinamensis, Anthonomus spp., Sitophilus spp., Otiorrhynchus sulcatus, Cosmopolites sordidus, Ceuthorrhynchus assimilis, Hypera postica, Dermestes spp., Trogoderma spp., Anthrenus spp., Attagenus spp., Lyctus spp., Meligethes aeneus, Ptinus spp., Niptus
 10 hololeucus, Gibbium psyllodes, Tribolium spp., Tenebrio molitor, Agriotes spp., Conoderus spp., Melolontha melolontha, Amphimallon solstitialis, Costelytra zealandica.

Aus der Ordnung der Hymenoptera z.B. Diprion spp., Hoplocampa spp., Lasius spp., Monomorium pharaonis, Vespa spp.

15 Aus der Ordnung der Diptera z.B. Aedes spp., Anopheles spp., Culex spp., Drosophila melanogaster, Musca spp., Fannia spp., Calliphora erythrocephala, Lucilia spp., Chrysomyia spp., Cuterebra spp., Gastrophilus spp., Hyppobosca spp., Stomoxys spp., Oestrus spp., Hypoderma spp., Tabanus spp., Tannia spp., Bibio hortulanus, Oscinella frit, Phorbia spp., Pegomyia hyoscyami, Ceratitis capitata,
 20 Dacus oleae, Tipula paludosa.

Aus der Ordnung der Siphonaptera z.B. Xenopsylla cheopis, Ceratophyllus spp..

Aus der Ordnung der Arachnida z.B. Scorpio maurus, Latrodectus mactans.

Aus der Ordnung der Acarina z.B. Acarus siro, Argas spp., Ornithodoros spp., Dermanyssus gallinae, Eriophyes ribis, Phyllocoptruta oleivora, Boophilus spp.,
 25 Rhipicephalus spp., Amblyomma spp., Hyalomma spp., Ixodes spp., Psoroptes spp., Chorioptes spp., Sarcoptes spp., Tarsonemus spp., Bryobia praetiosa, Panonychus spp., Tetranychus spp..

Zu den pflanzenparasitären Nematoden gehören Pratylenchus spp., Radopholus
 30 similis, Ditylenchus dipsaci, Tylenchulus semipenetrans, Heterodera spp., Meloidogyne spp., Aphelenchoides spp., Longidorus spp., Xiphinema spp., Trichodorus spp..

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe der Formel (I) zeichnen sich insbesondere durch hervorragende Wirkung gegen Larven des Meerretichblattkäfers (*Phaedon cochleariae*), Raupen des Eulenfalters (*Spodoptera frugiperda*) und alle Stadien der gemeinen Spinnmilbe (*Tetranychus urticae*) aus.

Die Wirkstoffe können in die üblichen Formulierungen überführt werden, wie Lösungen, Emulsionen, Spritzpulver, Suspensionen, Pulver, Stäubemittel, Pasten, lösliche Pulver, Granulate, Suspensions-Emulsions-Konzentrate, wirkstoff-imprägnierte Natur- und synthetische Stoffe sowie Feinstverkapselungen in polymeren Stoffen.

Diese Formulierungen werden in bekannter Weise hergestellt, z. B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit Streckmitteln, also flüssigen Lösungsmitteln und/oder festen Trägerstoffen, gegebenenfalls unter Verwendung von oberflächenaktiven Mitteln, also Emulgiermitteln und/oder Dispergiermitteln und/oder schaum erzeugenden Mitteln.

Im Falle der Benutzung von Wasser als Streckmittel können z.B. auch organische Lösungsmittel als Hilfslösungsmittel verwendet werden. Als flüssige Lösungsmittel kommen im wesentlichen in Frage: Aromaten, wie Xylol, Toluol, oder Alkyl-naphthaline, chlorierte Aromaten und chlorierte aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Chlorbenzole, Chlorethylene oder Methylenchlorid, aliphatische Kohlenwasserstoffe, wie Cyclohexan oder Paraffine, z.B. Erdölfraktionen, mineralische und pflanzliche Öle, Alkohole, wie Butanol oder Glykol sowie deren Ether und Ester, Ketone wie Aceton, Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Cyclohexanon, stark polare Lösungsmittel, wie Dimethylformamid und Dimethylsulfoxid, sowie Wasser.

Als feste Trägerstoffe kommen in Frage:
z.B. Ammoniumsalze und natürliche Gesteinsmehle, wie Kaoline, Tonerden, Talkum, Kreide, Quarz, Attapulgit, Montmorillonit oder Diatomeenerde und

synthetische Gesteinsmehle, wie hochdisperse Kieselsäure, Aluminiumoxid und Silikate, als feste Trägerstoffe für Granulate kommen in Frage: z.B. gebrochene und fraktionierte natürliche Gesteine wie Calcit, Marmor, Bims, Sepiolith, Dolomit sowie synthetische Granulate aus anorganischen und organischen Mehlen sowie Granulate aus organischem Material wie Sägemehl, Kokosnußschalen, Maiskolben und Tabakstengeln; als Emulgier- und/oder schaumzeugende Mittel kommen in Frage: z.B. nichtionogene und anionische Emulgatoren, wie Polyoxyethylen-Fettsäure-Ester, Polyoxyethylen-Fettalkohol-Ether, z.B. Alkylaryl-polyglykolether, Alkylsulfonate, Alkylsulfate, Arylsulfonate sowie Eiweißhydrolysate; als Dispergiermittel kommen in Frage: z.B. Lignin-Sulfitablaugen und Methylcellulose.

Es können in den Formulierungen Haftmittel wie Carboxymethylcellulose, natürliche und synthetische pulvrige, körnige oder latexförmige Polymere verwendet werden, wie Gummiarabicum, Polyvinylalkohol, Polyvinylacetat, sowie natürliche Phospholipide, wie Kephaline und Lecithine und synthetische Phospholipide. Weitere Additive können mineralische und vegetabile Öle sein.

Es können Farbstoffe wie anorganische Pigmente, z.B. Eisenoxid, Titanoxid, Ferrocyanblau und organische Farbstoffe, wie Alizarin-, Azo- und Metallphthalocyanin-farbstoffe und Spurennährstoffe wie Salze von Eisen, Mangan, Bor, Kupfer, Kobalt, Molybdän und Zink verwendet werden.

Die Formulierungen enthalten im allgemeinen zwischen 0,1 und 95 Gewichtsprozent Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,5 und 90 %.

Der erfindungsgemäße Wirkstoff kann in seinen handelsüblichen Formulierungen sowie in den aus diesen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen in Mischung mit anderen Wirkstoffen, wie Insektiziden, Lockstoffen, Sterilantien, Bakteriziden, Akariziden, Nematiziden, Fungiziden, wachstumsregulierenden Stoffen oder Herbiziden vorliegen. Zu den Insektiziden zählen beispielsweise Phosphorsäureester,

Carbamate, Carbonsäureester, chlorierte Kohlenwasserstoffe, Phenylharnstoffe, durch Mikroorganismen hergestellte Stoffe u.a..

Besonders günstige Mischpartner sind z.B. die folgenden:

5

Fungizide:

- 2-Aminobutan; 2-Anilino-4-methyl-6-cyclopropyl-pyrimidin; 2',6'-Dibromo-2-methyl-4'-trifluoromethoxy-4'-trifluoro-methyl-1,3-thiazol-5-carboxanilid; 2,6-Dichloro-N-(4-trifluoromethylbenzyl)-benzamid; (E)-2-Methoxyimino-N-methyl-2-(2-phenoxyphenyl)-acetamid; 8-Hydroxyquinolinsulfat; Methyl-(E)-2-{2-[6-(2-cyano-10 phenoxy)-pyrimidin-4-yloxy]-phenyl}-3-methoxyacrylat; Methyl-(E)-methoximino-[alpha-(o-tolyloxy)-o-tolyl]acetat; 2-Phenylphenol (OPP), Aldimorph, Ampropylfos, Anilazin, Azaconazol, Benalaxyl, Benodanil, Benomyl, Binapacryl, Biphenyl, Bitertanol, Blasticidin-S, Bromuconazole, Bupirimate, Buthiobate, 15 Calciumpolysulfid, Captafol, Captan, Carbendazim, Carboxin, Chinomethionat (Quinomethionat), Chloroneb, Chloropicrin, Chlorothalonil, Chlozolinat, Cufraneb, Cymoxanil, Cyproconazole, Cyprofuram, Dichlorophen, Diclobutrazol, Diclofluanid, Diclomezin, Dicloran, Diethofencarb, 20 Difenoconazol, Dimethirimol, Dimethomorph, Diniconazol, Dinocap, Diphenylamin, Dipyrithion, Ditalimfos, Dithianon, Dodine, Drazoxolon, Edifenphos, Epoxyconazole, Ethirimol, Etridiazol, Fenarimol, Fenbuconazole, Fenfuram, Fenitropan, Fenpiclonil, Fenpropidin, Fenpropimorph, Fentinacetat, Fentinhydroxyd, Ferbam, Ferimzone, Fluazinam, 25 Fludioxonil, Fluoromide, Fluquinconazole, Flusilazole, Flusulfamide, Flutolanil, Flutriafol, Folpet, Fosetyl-Aluminium, Fthalide, Fuberidazol, Furalaxyl, Furmecyclo-
lox, Guazatine, Hexachlorobenzol, Hexaconazol, Hymexazol, 30 Imazalil, Imibenconazol, Iminoctadin, Iprobenfos (IBP), Iprodion, Isoprothiolan,

- Kasugamycin, Kupfer-Zubereitungen, wie: Kupferhydroxid, Kupfernaphthenat, Kupferoxychlorid, Kupfersulfat, Kupferoxid, Oxin-Kupfer und Bordeaux-Mischung, Mancopper, Mancozeb, Maneb, Mepanipirim, Mepronil, Metalaxyl, Metconazol, Methasulfocarb, Methfuroxam, Metiram, Metsulfovax, Myclobutanil,
- 5 Nickel-dimethyldithiocarbamat, Nitrothal-isopropyl, Nuarimol, Ofurace, Oxadixyl, Oxamocarb, Oxycarboxin, Pefurazoat, Penconazol, Pencycuron, Phosdiphen, Phthalid, Pimaricin, Piperalin, Polycarbamate, Polyoxin, Probenazol, Prochloraz, Procymidon, Propamocarb, Propiconazole, Propineb, Pyrazophos, Pyrifenox, Pyrimethanil, Pyroquilon,
- 10 Quintozen (PCNB), Schwefel und Schwefel-Zubereitungen, Tebuconazol, Tecloftalam, Tecnazen, Tetraconazol, Thiabendazol, Thicyofen, Thiophanat-methyl, Thiram, Tolclophos-methyl, Tolyfluanid, Triadimefon, Triadimenol, Triazoxid, Trichlamid, Tricyclazol, Tridemorph, Triflumizol, Triforin, Triticonazol,
- 15 Validamycin A, Vinclozolin, Zineb, Ziram.

Bakterizide:

- Bronopol, Dichlorophen, Nitrapyrin, Nickel-Dimethyldithiocarbamat, Kasugamycin,
- 20 Octhilinon, Furancarbonsäure, Oxytetracyclin, Probenazol, Streptomycin, Tecloftalam, Kupfersulfat und andere Kupfer-Zubereitungen.

Insektizide / Akarizide / Nematizide:

- Abamectin, Acephate, Acetamiprid, Acrinathrin, Alanycarb, Aldicarb, Aldoxycarb,
- 25 Alpha-cypermethrin, Alphamethrin, Amitraz, Avermectin, AZ 60541, Azadirachtin, Azamethiphos, Azinphos A, Azinphos M, Azocyclotin, Bacillus popilliae, Bacillus sphaericus, Bacillus subtilis, Bacillus thuringiensis, Baculoviren, Beauveria bassiana, Beauveria tenella, Bendiocarb, Benfuracarb, Bensultap, Benzoximate, Betacyfluthrin, Bifenazate, Bifenthrin, Bioethanomethrin,
- 30 Biopermethrin, BPMC, Bromophos A, Bufencarb, Buprofezin, Butathiofos, Butocarboxim, Butylpyridaben,

- Cadusafos, Carbaryl, Carbofuran, Carbophenothion, Carbosulfan, Cărtap,
Chloethocarb, Chlorethoxyfos, Chlorfenapyr, Chlorfenvinphos, Chlorfluazuron,
Chlormephos, Chlorpyrifos, Chlorpyrifos M, Chlovaporthrin, Cis-Resmethrin,
Cispermethrin, Clocythrin, Cloethocarb, Clofentezine, Cyanophos, Cycloprene,
5 Cycloprothrin, Cyfluthrin, Cyhalothrin, Cyhexatin, Cypermethrin, Cyromazine,
Deltamethrin, Demeton M, Demeton S, Demeton-S-methyl, Diaclogen,
Diafenthiuron, Diazinon, Dichlorvos, Diflubenzuron, Dimethoat, Dimethylvinphos,
Diofenolan, Disulfoton, Docusat-sodium, Dofenapyn,
Eflusilanate, Enamectin, Empenthrin, Endosulfan, Entomopftthora spp.,
10 Esfenvalerate, Ethiofencarb, Ethion, Ethoprophos, Etofenprox, Etoxazole, Etrimfos,
Fenamiphos, Fenazaquin, Fenbutatin oxide, Fenitrothion, Fenothiocarb, Fenoxacrim,
Fenoxycarb, Fenpropathrin, Fenpyrad, Fenpyrithrin, Fenpyroximate, Fenvalerate,
Fipronil, Fluazinam, Fluazuron, Flubrocycythrinate, Flucycloxuron, Flucythrinate,
Flufenoxuron, Flutenzine, Fluvalinate, Fonophos, Fosmethilan, Fosthiazate,
15 Fubfenprox, Furathiocarb,
Granuloseviren,
Halofenozide, HCH, Heptenophos, Hexaflumuron, Hexythiazox, Hydroprene,
Imidacloprid, Isazofos, Isofenphos, Isoxathion, Ivermectin,
Kernpolyederviren,
20 Lambda-cyhalothrin, Lufenuron,
Malathion, Mecarbam, Metaldehyd, Methamidophos, Metharhizium anisopliae,
Metharhizium flavoviride, Methidathion, Methiocarb, Methomyl, Methoxyfenozide,
Metolcarb, Metoxadiazone, Mevinphos, Milbemectin, Monocrotophos,
Naled, Nitenpyram, Nithiazine, Novaluron,
25 Omethoat, Oxamyl, Oxydemethon M,
Paecilomyces fumosoroseus, Parathion A, Parathion M, Permethrin, Phenthoat,
Phorat, Phosalone, Phosmet, Phosphamidon, Phoxim, Pirimicarb, Pirimiphos A,
Pirimiphos M, Profenofos, Promecarb, Propoxur, Prothiofos, Prothoat, Pymetrozine,
Pyraclofos, Pyresmethrin, Pyrethrum, Pyridaben, Pyridathion, Pyrimidifen,
30 Pyriproxyfen,
Quinalphos,

- Ribavirin,
Salithion, Sebufos, Silafluofen, Spinosad, Sulfotep, Sulprofos,
Tau-fluvalinate, Tebufenozide, Tebufenpyrad, Tebupirimiphos, Teflubenzuron,
Tefluthrin, Temephos, Temevinphos, Terbufos, Tetrachlorvinphos, Theta-
5 cypermethrin, Thiapronil, Thiatriphos, Thiocyclam hydrogen oxalate, Thiodicarb,
Thiofanox, Thuringiensin, Tralocythrin, Tralomethrin, Triarathene, Triazamate,
Triazophos, Triazuron, Trichlophenidine, Trichlorfon, Triflumuron, Trimethacarb,
Vamidothion, Vaniliprole, Verticillium lecanii,
YI 5302,
10 Zeta-cypermethrin, Zolaprofos,
(1R-cis)-[5-(Phenylmethyl)-3-furanyl]-methyl-3-[(dihydro-2-oxo-3(2H)-
furanylidene)-methyl]-2,2-dimethylcyclopropanecarboxylat,
(3-Phenoxyphenyl)-methyl-2,2,3,3-tetramethylcyclopropanecarboxylat,
1-[(2-Chlor-5-thiazolyl)-methyl]-tetrahydro-3,5-dimethyl-N-nitro-1,3,5-triazin-
15 2(1H)-imin,
2-(2-Chlor-6-fluorphenyl)-4-[4-(1,1-dimethylethyl)-phenyl]-4,5-dihydro-oxazol,
2-(Acetyloxy)-3-dodecyl-1,4-naphthalindion,
2-Chlor-N-[[[4-(1-phenylethoxy)-phenyl]-amino]-carbonyl]-benzamid,
2-Chlor-N-[[[4-(2,2-dichlor-1,1-difluorethoxy)-phenyl]-amino]-carbonyl]-benzamid,
20 3-Methylphenyl-propylcarbamate,
4-[4-(4-Ethoxyphenyl)-4-methylpentyl]-1-fluor-2-phenoxy-benzol,
4-Chlor-2-(1,1-dimethylethyl)-5-[[2-(2,6-dimethyl-4-phenoxyphenoxy)ethyl]thio]-
3(2H)-pyridazinon,
4-Chlor-2-(2-chlor-2-methylpropyl)-5-[(6-iod-3-pyridinyl)-methoxy]-3(2H)-
25 pyridazinon,
4-Chlor-5-[(6-chlor-3-pyridinyl)-methoxy]-2-(3,4-dichlorphenyl)-3(2H)-pyridazinon,
Bacillus thuringiensis strain EG-2348,
Benzoessäure-[2-benzoyl-1-(1,1-dimethylethyl)-hydrazid],
Butansäure-2,2-dimethyl-3-(2,4-dichlorphenyl)-2-oxo-1-oxaspiro[4.5]dec-3-en-4-yl-
30 ester,
[3-[(6-Chlor-3-pyridinyl)methyl]-2-thiazolidinyliden]-cyanamid,

Dihydro-2-(nitromethylen)-2H-1,3-thiazine-3(4H)-carboxaldehyd,
Ethyl-[2-[[1,6-dihydro-6-oxo-1-(phenylmethyl)-4-pyridazinyl]oxy]ethyl]-carbamate,
N-(3,4,4-Trifluor-1-oxo-3-butenyl)-glycin,
N-(4-Chlorphenyl)-3-[4-(difluormethoxy)phenyl]-4,5-dihydro-4-phenyl-1H-pyrazol-
5 1-carboxamid,
N-[(2-Chlor-5-thiazolyl)methyl]-N'-methyl-N''-nitro-guanidin,
N-Methyl-N'-(1-methyl-2-propenyl)-1,2-hydrazindicarbothioamid,
N-Methyl-N'-2-propenyl-1,2-hydrazindicarbothioamid,
O,O-Diethyl-[2-(dipropylamino)-2-oxoethyl]-ethylphosphoramidothioat.

10

Auch eine Mischung mit anderen bekannten Wirkstoffen, wie Herbiziden oder mit Düngemitteln und Wachstumsregulatoren ist möglich.

Der erfindungsgemäße Wirkstoff kann ferner in seinen handelsüblichen Formulierungen sowie in den aus diesen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen in Mischung mit Synergisten vorliegen. Synergisten sind Verbindungen, durch die die Wirkung der Wirkstoffe gesteigert wird, ohne daß der zugesetzte Synergist selbst aktiv wirksam sein muß.

20 Der Wirkstoffgehalt der aus den handelsüblichen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen kann in weiten Bereichen variieren. Die Wirkstoffkonzentration der Anwendungsformen kann von 0,0000001 bis zu 95 Gew.-% Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,0001 und 1 Gew.-% liegen.

25 Die Anwendung geschieht in einer den Anwendungsformen angepaßten üblichen Weise.

Bei der Anwendung gegen Hygiene- und Vorratsschädlinge zeichnet sich der Wirkstoff durch eine hervorragende Residualwirkung auf Holz und Ton sowie durch eine
30 gute Alkalistabilität auf gekalkten Unterlagen aus.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe wirken nicht nur gegen Pflanzen-, Hygiene- und Vorratsschädlinge, sondern auch auf dem veterinärmedizinischen Sektor gegen tierische Parasiten (Ektoparasiten) wie Schildzecken, Lederzecken, Räude milben, Laufmilben, Fliegen (stechend und leckend), parasitierende Fliegenlarven, Läuse, Haarlinge, Federlinge und Flöhe. Zu diesen Parasiten gehören:

- 5 Aus der Ordnung der Anoplurida z.B. Haematopinus spp., Linognathus spp., Pediculus spp., Phtirus spp., Solenopotes spp..
- 10 Aus der Ordnung der Mallophagida und den Unterordnungen Amblycerina sowie Ischnocerina z.B. Trimenopon spp., Menopon spp., Trinoton spp., Bovicola spp., Werneckiella spp., Lepikentron spp., Damalina spp., Trichodectes spp., Felicola spp..

- 15 Aus der Ordnung Diptera und den Unterordnungen Nematocerina sowie Brachycerina z.B. Aedes spp., Anopheles spp., Culex spp., Simulium spp., Eusimulium spp., Phlebotomus spp., Lutzomyia spp., Culicoides spp., Chrysops spp., Hybomitra spp., Atylotus spp., Tabanus spp., Haematopota spp., Philipomyia spp., Braula spp., Musca spp., Hydrotaea spp., Stomoxys spp., Haematobia spp., Morellia spp., Fannia spp., Glossina spp., Calliphora spp., Lucilia spp., Chrysomyia spp., Wohlfahrtia spp., Sarcophaga spp., Oestrus spp., Hypoderma spp., Gasterophilus spp., Hippobosca spp., Lipoptena spp., Melophagus spp..
- 20

- 25 Aus der Ordnung der Siphonaptera z.B. Pulex spp., Ctenocephalides spp., Xenopsylla spp., Ceratophyllus spp..

- Aus der Ordnung der Heteropterida z.B. Cimex spp., Triatoma spp., Rhodnius spp., Panstrongylus spp..

- 30 Aus der Ordnung der Blattarida z.B. Blatta orientalis, Periplaneta americana, Blattella germanica, Supella spp..

Aus der Unterklasse der Acaria (Acarida) und den Ordnungen der Meta- sowie Mesostigmata z.B. Argas spp., Ornithodoros spp., Otabius spp., Ixodes spp., Amblyomma spp., Boophilus spp., Dermacentor spp., Haemaphysalis spp., Hyalomma spp., Rhipicephalus spp., Dermanyssus spp., Raillietia spp., Pneumonyssus spp., Sternostoma spp., Varroa spp..

Aus der Ordnung der Actinedida (Prostigmata) und Acaridida (Astigmata) z.B. Acarapis spp., Cheyletiella spp., Ornithocheyletia spp., Myobia spp., Psorergates spp., Demodex spp., Trombicula spp., Listrophorus spp., Acarus spp., Tyrophagus spp., Caloglyphus spp., Hypodectes spp., Pterolichus spp., Psoroptes spp., Chorioptes spp., Otodectes spp., Sarcoptes spp., Notoedres spp., Knemidocoptes spp., Cytodites spp., Laminosioptes spp..

Beispielsweise zeigen die erfindungsgemäßen Wirkstoffe der Formel (I) eine hervorragende Wirksamkeit gegen alle larvalen Stadien der Fliege *Lucillia cuprina*.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe eignen sich auch zur Bekämpfung von Arthropoden, die landwirtschaftliche Nutztiere, wie z.B. Rinder, Schafe, Ziegen, Pferde, Schweine, Esel, Kamele, Büffel, Kaninchen, Hühner, Puten, Enten, Gänse, Bienen, sonstige Haustiere wie z.B. Hunde, Katzen, Stubenvögel, Aquarienfische sowie sogenannte Versuchstiere, wie z.B. Hamster, Meerschweinchen, Ratten und Mäuse befallen. Durch die Bekämpfung dieser Arthropoden sollen Todesfälle und Leistungsminderungen (bei Fleisch, Milch, Wolle, Häuten, Eiern, Honig usw.) vermindert werden, so daß durch den Einsatz der erfindungsgemäßen Wirkstoffe eine wirtschaftlichere und einfachere Tierhaltung möglich ist.

Die Anwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geschieht im Veterinärsektor in bekannter Weise durch enterale Verabreichung in Form von beispielsweise Tabletten, Kapseln, Tränken, Drenchen, Granulaten, Pasten, Boli, des feed-through-Verfahrens, von Zäpfchen, durch parenterale Verabreichung, wie zum Beispiel durch Injektionen (intramuskulär, subcutan, intravenös, intraperitoneal u.a.), Implantate, durch nasale

Applikation, durch dermale Anwendung in Form beispielsweise des Tauchens oder Badens (Dippen), Sprühens (Spray), Aufgießens (Pour-on und Spot-on), des Waschens, des Einpuderns sowie mit Hilfe von wirkstoffhaltigen Formkörpern, wie Halsbändern, Ohrmarken, Schwanzmarken, Gliedmaßenbändern, Halftern, Markierungsvorrichtungen usw.

Bei der Anwendung für Vieh, Geflügel, Haustiere etc. kann man die Wirkstoffe der Formel (I) als Formulierungen (beispielsweise Pulver, Emulsionen, fließfähige Mittel), die die Wirkstoffe in einer Menge von 1 bis 80 Gew.-% enthalten, direkt oder nach 100 bis 10 000-facher Verdünnung anwenden oder sie als chemisches Bad verwenden.

Außerdem wurde gefunden, daß die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) eine hohe insektizide Wirkung gegen Insekten zeigen, die technische Materialien zerstören.

Beispielhaft und vorzugsweise - ohne jedoch zu limitieren - seien die folgenden Insekten genannt:

Käfer wie

Hylotrupes bajulus, *Chlorophorus pilosis*, *Anobium punctatum*, *Xestobium rufovillosus*, *Ptilinus pecticornis*, *Dendrobium pertinex*, *Ernobius mollis*, *Priobium carpini*, *Lyctus brunneus*, *Lyctus africanus*, *Lyctus planicollis*, *Lyctus linearis*, *Lyctus pubescens*, *Trogoxylon aequale*, *Minthes rugicollis*, *Xyleborus spec.* *Tryptodendron spec.* *Apate monachus*, *Bostrychus capucins*, *Heterobostrychus brunneus*, *Sinoxylon spec.* *Dinoderus minutus*

Hautflügler wie

Sirex juvencus, *Urocerus gigas*, *Urocerus gigas taignus*, *Urocerus augur*

Termiten wie

Kalotermes flavicollis, Cryptotermes brevis, Heterotermes indicola, Reticulitermes flavipes, Reticulitermes santonensis, Reticulitermes lucifugus, Mastotermes darwiniensis, Zootermopsis nevadensis, Coptotermes formosanus.

5 Borstenschwänze, wie Lepisma saccharina.

Unter technischen Materialien sind im vorliegenden Zusammenhang nicht-lebende Materialien zu verstehen, wie vorzugsweise Kunststoffe, Klebstoffe, Leime, Papiere und Kartone, Leder, Holz und Holzverarbeitungsprodukte und Anstrichmittel.

10

Ganz besonders bevorzugt handelt es sich bei dem vor Insektenbefall zu schützenden Material um Holz und Holzverarbeitungsprodukte.

15

Unter Holz und Holzverarbeitungsprodukten, welche durch das erfindungsgemäße Mittel bzw. dieses enthaltende Mischungen geschützt werden können, ist beispielhaft zu verstehen: Bauholz, Holzbalken, Eisenbahnschwellen, Brückenteile, Bootsstege, Holzfahrzeuge, Kisten, Paletten, Container, Telefonmasten, Holzverkleidungen, Holzfenster und -türen, Sperrholz, Spanplatten, Tischlerarbeiten oder Holzprodukte, die ganz allgemein beim Hausbau oder in der Bautischlerei Verwendung finden.

20

Die Wirkstoffe können als solche, in Form von Konzentraten oder allgemein üblichen Formulierungen wie Pulver, Granulate, Lösungen, Suspensionen, Emulsionen oder Pasten angewendet werden.

25

Die genannten Formulierungen können in an sich bekannter Weise hergestellt werden, z.B. durch Vermischen der Wirkstoffe mit mindestens einem Lösungs- bzw. Verdünnungsmittel, Emulgator, Dispergier- und/oder Binde- oder Fixiermittels, Wasser-Repellent, gegebenenfalls Sikkative und UV-Stabilisatoren und gegebenenfalls Farbstoffen und Pigmenten sowie weiteren Verarbeitungshilfsmitteln.

30

Die zum Schutz von Holz und Holzwerkstoffen verwendeten insektiziden Mittel oder Konzentrate enthalten den erfindungsgemäßen Wirkstoff in einer Konzentration von 0,0001 bis 95 Gew.-%, insbesondere 0,001 bis 60 Gew.-%.

- 5 Die Menge der eingesetzten Mittel bzw. Konzentrate ist von der Art und dem Vorkommen der Insekten und des Mediums abhängig. Die optimale Einsatzmenge kann bei der Anwendung jeweils durch Testreihen ermittelt werden. Im allgemeinen ist es jedoch ausreichend 0,0001 bis 20 Gew.-%, vorzugsweise 0,001 bis 10 Gew.-%, des Wirkstoffs, bezogen auf das zu schützende Material, einzusetzen.

10

Als Lösungs- und/oder Verdünnungsmittel dient ein organisch-chemisches Lösungsmittel oder Lösungsmittelgemisch und/oder ein öliges oder ölartiges schwer flüchtiges organisch-chemisches Lösungsmittel oder Lösungsmittelgemisch und/oder ein polares organisch-chemisches Lösungsmittel oder Lösungsmittelgemisch und/oder Wasser und gegebenenfalls einen Emulgator und/oder Netzmittel.

15

Als organisch-chemische Lösungsmittel werden vorzugsweise ölige oder ölartige Lösungsmittel mit einer Verdunstungszahl über 35 und einem Flammpunkt oberhalb 30°C, vorzugsweise oberhalb 45°C, eingesetzt. Als derartige schwerflüchtige, wasserunlösliche, ölige und ölartige Lösungsmittel werden entsprechende Mineralöle oder deren Aromatenfraktionen oder mineralölhaltige Lösungsmittelgemische, vorzugsweise Testbenzin, Petroleum und/oder Alkylbenzol verwendet.

20

- Vorteilhaft gelangen Mineralöle mit einem Siedebereich von 170 bis 220°C, Testbenzin mit einem Siedebereich von 170 bis 220°C, Spindelöl mit einem Siedebereich von 250 bis 350°C, Petroleum bzw. Aromaten vom Siedebereich von 160 bis 280°C, Terpentinöl und dgl. zum Einsatz.

25

- In einer bevorzugten Ausführungsform werden flüssige aliphatische Kohlenwasserstoffe mit einem Siedebereich von 180 bis 210°C oder hochsiedende Gemische von aromatischen und aliphatischen Kohlenwasserstoffen mit einem Siedebereich von

30

180 bis 220°C und/oder Spindelöl und/oder Monochlornaphthalin, vorzugsweise α -Monochlornaphthalin, verwendet.

5 Die organischen schwerflüchtigen öligen oder ölartigen Lösungsmittel mit einer Verdunstungszahl über 35 und einem Flammpunkt oberhalb 30°C, vorzugsweise oberhalb 45°C, können teilweise durch leicht oder mittelflüchtige organisch-chemische Lösungsmittel ersetzt werden, mit der Maßgabe, daß das Lösungsmittelgemisch ebenfalls eine Verdunstungszahl über 35 und einen Flammpunkt oberhalb 30°C, vorzugsweise oberhalb 45°C, aufweist und daß das Insektizid-Fungizid-Gemisch in
10 diesem Lösungsmittelgemisch löslich oder emulgierbar ist.

Nach einer bevorzugten Ausführungsform wird ein Teil des organisch-chemischen Lösungsmittels oder Lösungsmittelgemisches durch ein aliphatisches polares organisch-chemisches Lösungsmittel oder Lösungsmittelgemisch ersetzt. Vorzugsweise
15 gelangen Hydroxyl- und/oder Ester- und/oder Ethergruppen enthaltende aliphatische organisch-chemische Lösungsmittel wie beispielsweise Glykolether, Ester oder dgl. zur Anwendung.

Als organisch-chemische Bindemittel werden im Rahmen der vorliegenden Erfindung die an sich bekannten wasserverdünnbaren und/oder in den eingesetzten organisch-chemischen Lösungsmitteln löslichen oder dispergier- bzw. emulgierbaren Kunstharze und/oder bindende trocknende Öle, insbesondere Bindemittel bestehend aus oder enthaltend ein Acrylatharz, ein Vinylharz, z.B. Polyvinylacetat, Polyesterharz, Polykondensations- oder Polyadditionsharz, Polyurethanharz, Alkydharz bzw.
20 modifiziertes Alkydharz, Phenolharz, Kohlenwasserstoffharz wie Inden-Cumaronharz, Siliconharz, trocknende pflanzliche und/oder trocknende Öle und/oder physikalisch trocknende Bindemittel auf der Basis eines Natur- und/oder Kunstharzes verwendet.

30 Das als Bindemittel verwendete Kunstharz kann in Form einer Emulsion, Dispersion oder Lösung, eingesetzt werden. Als Bindemittel können auch Bitumen oder bitumi-

nöse Substanzen bis zu 10 Gew.-%, verwendet werden. Zusätzlich können an sich bekannte Farbstoffe, Pigmente, wasserabweisende Mittel, Geruchskorrigentien und Inhibitoren bzw. Korrosionsschutzmittel und dgl. eingesetzt werden.

5 Bevorzugt ist gemäß der Erfindung als organisch-chemische Bindemittel mindestens ein Alkydharz bzw. modifiziertes Alkydharz und/oder ein trocknendes pflanzliches Öl im Mittel oder im Konzentrat enthalten. Bevorzugt werden gemäß der Erfindung Alkydharze mit einem Ölgehalt von mehr als 45 Gew.-%, vorzugsweise 50 bis 68 Gew.-%, verwendet.

10

Das erwähnte Bindemittel kann ganz oder teilweise durch ein Fixierungsmittel(gemisch) oder ein Weichmacher(gemisch) ersetzt werden. Diese Zusätze sollen einer Verflüchtigung der Wirkstoffe sowie einer Kristallisation bzw. dem Ausfallen vorbeugen. Vorzugsweise ersetzen sie 0,01 bis 30 % des Bindemittels
15 (bezogen auf 100 % des eingesetzten Bindemittels).

20

Die Weichmacher stammen aus den chemischen Klassen der Phthalsäureester wie Dibutyl-, Dioctyl- oder Benzylbutylphthalat, Phosphorsäureester wie Tributylphosphat, Adipinsäureester wie Di-(2-ethylhexyl)-adipat, Stearate wie Butylstearat
oder Amylstearat, Oleate wie Butyloleat, Glycerinether oder höhermolekulare Glykolether, Glycerinester sowie p-Toluolsulfonsäureester.

25

Fixierungsmittel basieren chemisch auf Polyvinylalkylethern wie z.B. Polyvinylmethylether oder Ketonen wie Benzophenon, Ethylenbenzophenon.

30

Als Lösungs- bzw. Verdünnungsmittel kommt insbesondere auch Wasser in Frage, gegebenenfalls in Mischung mit einem oder mehreren der oben genannten organisch-chemischen Lösungs- bzw. Verdünnungsmittel, Emulgatoren und Dispergatoren.

Ein besonders effektiver Holzschutz wird durch großtechnische Imprägnierverfahren, z.B. Vakuum, Doppelvakuum oder Druckverfahren, erzielt.

Die anwendungsfertigen Mittel können gegebenenfalls noch weitere Insektizide und gegebenenfalls noch ein oder mehrere Fungizide enthalten.

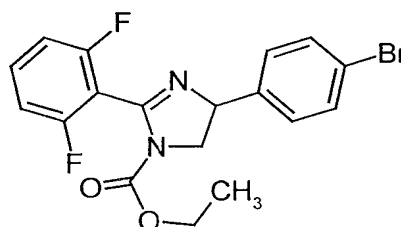
- 5 Als zusätzliche Zumischpartner kommen vorzugsweise die in der WO 94/29 268 genannten Insektizide und Fungizide in Frage. Die in diesem Dokument genannten Verbindungen sind ausdrücklicher Bestandteil der vorliegenden Anmeldung.

- 10 Ganz besonders bevorzugte Zumischpartner können Insektizide, wie Chlorpyrifos, Phoxim, Silafluofin, Alphamethrin, Cyfluthrin, Cypermethrin, Deltamethrin, Permethrin, Imidacloprid, NI-25, Flufenoxuron, Hexaflumuron und Triflumuron, sowie Fungizide wie Epoxyconazole, Hexaconazole, Azaconazole, Propiconazole, Tebuconazole, Cyproconazole, Metconazole, Imazalil, Dichlorfluanid, Tolyfluanid, 3-Iod-2-propinyl-butylcarbamate, N-Octyl-isothiazolin-3-on und 4,5-Dichlor-N-octyl-
15 isothiazolin-3-on, sein.

Die Herstellung und die Verwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe gehen aus den nachfolgenden Beispielen hervor.

Herstellbeispiele

Beispiel I-1



5 (Verfahren A)

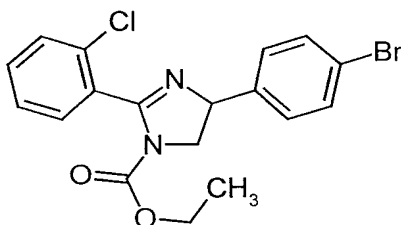
3,1 g (10 mmol) *N*-[2-(4-Bromphenyl)-2-chlorethyl]-carbamidsäureethylester (z.B. aus Beispiel II-1) und 2,09 g (15 mmol) 2,6-Difluorbenzonitril wurden in 10 ml konz. Schwefelsäure gelöst und drei Stunden bei Raumtemperatur gerührt, wobei sich die Lösung dunkel verfärbte. Danach wurde der Ansatz vorsichtig auf Eis gegossen. Es wurde 2x mit Dichlormethan extrahiert, die wäßrige Phase mit Natriumhydroxid alkalisch gestellt und erneut extrahiert. Die vereinigten organischen Phasen wurden mit gesättigter Kochsalzlösung extrahiert, getrocknet und eingeeengt. Die erhaltenen 4,4 g Rohprodukt wurden über eine Kieselgelsäule chromatographiert

10 (Cyclohexan : Ethylacetat = 5 : 1). Es wurden 3,6 g (88 % d.Th.) 4-(4-Bromphenyl)-1-ethoxycarbonyl-2-(2,6-difluorphenyl)-4,5-dihydro-1H-imidazol als gelbes zähes Öl erhalten.

15

¹H-NMR (400 MHz, CDCl₃): δ [ppm] 1,1 (t, 3 H); 3,7 (m, 1H); 4,1 (q, 2 H); 4,4 (m, 1H); 5,4 (m, 1H); 6,9-7,6 (m, 7 H)

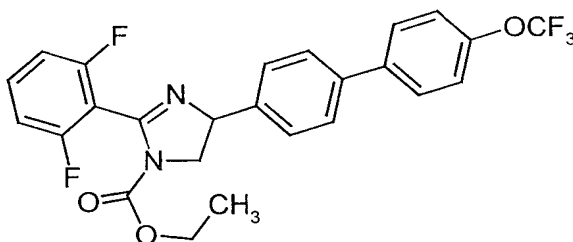
20

Beispiel I-2

(Verfahren A)

- 5 Analog Beispiel I-1 wurden aus 3,1 g (10 mmol) *N*-[2-(4-Bromphenyl)-2-chlorethyl]-carbamidsäureethylester (z.B. aus Beispiel II-1) und 2,1 g (15 mmol) 2-Chlorbenzonitril 2,9 g (72 % d.Th.) 4-(4-Bromphenyl)-2-(2-chlorphenyl)-1-ethoxycarbonyl-4,5-dihydro-1H-imidazol als farbloses, zähes Öl erhalten.

¹H-NMR (400 MHz, CDCl₃): δ [ppm] 1,0 (t, 3 H); 3,9 (m, 1H); 4,0 (q, 2 H); 4,4 (m, 10 1H); 5,3 (m, 1H); 7,2-7,6 (m, 8 H)

Beispiel I-3

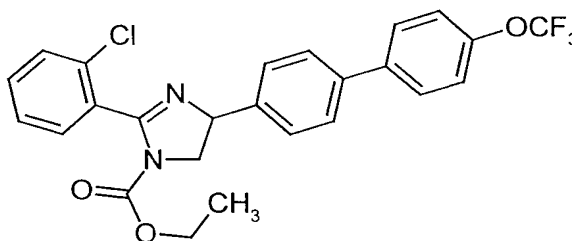
(Verfahren B)

15

3,6 g (9 mmol) 4-(4-Bromphenyl)-1-ethoxycarbonyl-2-(2,6-difluorphenyl)-4,5-dihydro-1H-imidazol (z.B. aus Beispiel I-1) wurden in 25 ml Dimethoxyethan gelöst und mit 20 ml 1M Sodalösung versetzt. Dazu wurden 2,9 g (11 mmol) 4-Trifluormethoxyphenylboronsäure (85 %-ig) und zuletzt als Katalysator 336 mg (0,48 mmol) 20 Dichloro-bis(triphenylphosphino)palladium(II) gegeben. Die zunächst gelbe Mischung wird zum Rückfluß erhitzt, wobei eine braune Lösung entsteht. Es wurde über Nacht gekocht, nach dem Abkühlen mit Wasser versetzt und mit Ethylacetat

extrahiert. Die vereinigten Extrakte wurden nacheinander mit Ammoniumchlorid-
lösung, Wasser und Kochsalzlösung gewaschen, eingengt und über eine Kieselgel-
säule chromatographiert (Cyclohexan : Ethylacetat = 10 : 1). Es wurden 2,50 g
(57 % d.Th.) 1-Ethoxycarbonyl-4-(4'-trifluormethoxy-4-biphenyl)-2-(2,6-difluor-
phenyl)-4,5-dihydro-1H-imidazol erhalten.
Schmp.: 105-107°C

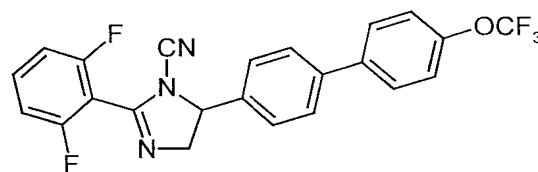
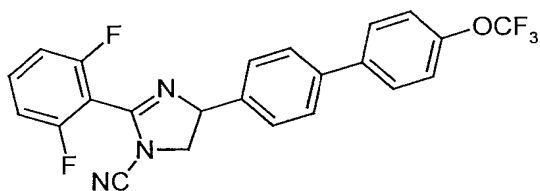
Beispiel I-4



10 (Verfahren B)

Analog Beispiel I-3 wurden aus 1,5 g (9,0 mmol) 4-(4-Bromphenyl)-2-(2-chlor-
phenyl)-1-ethoxycarbonyl-4,5-dihydro-1H-imidazol (z.B. aus Beispiel I-2) und 1,0 g
(4,8 mmol) 4-Trifluormethoxyphenylboronsäure 1,38 g (76 % d.Th.) 2-(2-Chlor-
phenyl)-1-ethoxycarbonyl-4-(4'-trifluormethoxy-4-biphenyl)-4,5-dihydro-1H-im-
dazol als farbloses Öl erhalten.

¹H-NMR (400 MHz, CDCl₃): δ [ppm] 1,0 (t, 3 H); 3,9 (m, 1H); 4,0 (q, 2 H); 4,4 (m,
1H); 5,4 (m, 1H); 7,2-7,6 (m, 12 H)

Beispiel I-5

5 (I-5a)

(I-5b)

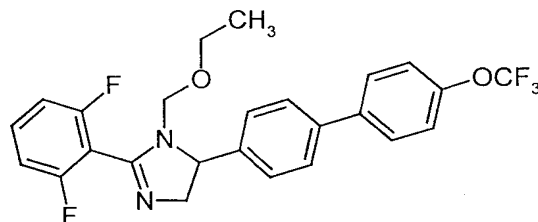
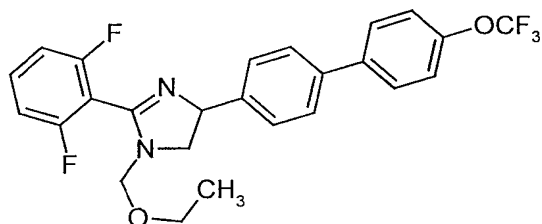
(Verfahren C)

In eine Lösung von 2,6 g (6,1 mmol) 4-(4'-Trifluormethoxy-4-biphenyl)-2-(2,6-difluorphenyl)-4,5-dihydro-1H-imidazol (z.B. aus Beispiel V-1) in 260 ml Dichlormethan wurden bei 5°C 22,9 g (0,37 mol) Chlorcyan eingeleitet. Es wurde 45 min
 10 bei 0-5°C nachgerührt. Anschließend wurde eine Lösung von 15,6 g (0,39 mol) Natriumhydroxid in 140 ml Wasser (10 %-ige Lauge) zugetropft. Nach Abtrennung der organischen Phase wurde die wäßrige mit Dichlormethan extrahiert, die vereinigten organischen Phasen mit Wasser gewaschen, getrocknet und im Wasserstrahlvakuum (30°C) eingeengt. Es wurden 2,9 g Rohprodukt erhalten, die säulenchromato-
 15 graphisch (Kieselgel Ø = 3 cm, l = 30 cm; Gradient Cyclohexan : Ethylacetat 7 : 1 → 5 : 1) aufgetrennt wurden.

Es wurden 1,55 g (57 % d.Th.) 1-Cyano-4-(4'-trifluormethoxy-4-biphenyl)-2-(2,6-difluorphenyl)-4,5-dihydro-1H-imidazol (I-5a) und 0,80 g (30 % d.Th.) 3-Cyano-4-(4'-trifluormethoxy-4-biphenyl)-2-(2,6-difluorphenyl)-4,5-dihydro-3H-imidazol
 20 (I-5b) erhalten.

(I-5a): Schmp.: 123-124°C

(I-5b): ¹H-NMR (500 MHz, DMSO): δ [ppm] 4,1 (m, 1H); 4,7 (m, 1H); 5,7 (m, 1H);
 7,4-7,9 (m, 11 H)

Beispiel I-6

5 (I-6a)

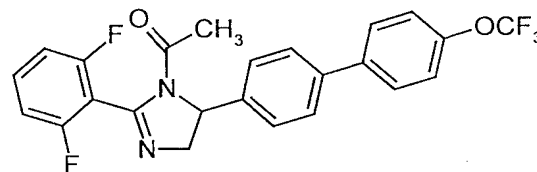
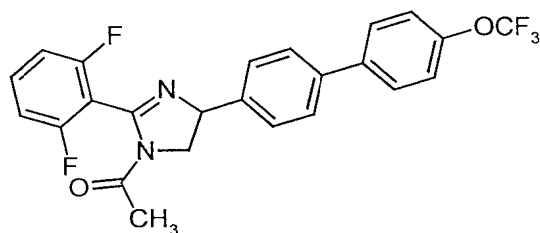
(I-6b)

(Verfahren C)

Bei 0°C wurde eine Lösung von 1,5 g (3,6 mmol) 4-(4'-Trifluormethoxy-4-biphenyl)-2-(2,6-difluorphenyl)-4,5-dihydro-1H-imidazol (z.B. aus Beispiel V-1) in 15 ml Dichlormethan erst mit 0,75 ml (0,55 g; 5,4 mmol) Triethylamin und dann mit 4 ml (0,41 g; 4,32 mmol) Chlormethylethylether versetzt. Nach Rühren über Nacht waren noch ca. 50 % Edukt vorhanden (DC). Es wurden weitere 0,25 ml Triethylamin und 0,17 ml des Ethers nachgelegt. Da keine weitere Umsetzung nachweisbar war, wurden nochmals 0,25 ml Triethylamin hinzugegeben und zum Sieden erwärmt. Zur Aufarbeitung wurde die Reaktionsmischung mit 10 %-iger Citronensäure und 1N Natronlauge extrahiert, getrocknet, eingeeengt und über eine Kieselgelsäule (Ø = 3 cm, l = 30 cm) chromatographiert. Durch Elution mit Cyclohexan/Ethylacetat mit einem fünfstufigen Gradienten von 20 : 1 bis 3 : 1 wurden als zweite Fraktion 0,30 g (17 % d.Th.) 1-Ethoxymethyl-4-(4'-trifluormethoxy-4-biphenyl)-2-(2,6-difluorphenyl)-4,5-dihydro-1H-imidazol (I-6a) und als dritte Fraktion 0,34 g (20 % d.Th.) 3-Ethoxymethyl-4-(4'-trifluormethoxy-4-biphenyl)-2-(2,6-difluorphenyl)-4,5-dihydro-3H-imidazol (I-6b) erhalten.

(I-6a): ¹H-NMR (400 MHz, DMSO): δ [ppm] 1,0 (t, 3 H); 3,2-3,5 (m, 2+1H); 4,1 (m, 1H); 4,4 (s, 1 H); 5,3 (m, 1H); 7,2-7,9 (m, 11 H)

25 (I-6b): ¹H-NMR (400 MHz, DMSO): δ [ppm] 0,9 (t, 3 H); 3,1-3,3 (m, 2 H); 3,7 (m, 1H); 4,2 (m, 2 H); 4,4 (m, 1H); 5,1 (m, 1H); 7,2-7,9 (m, 11 H)

Beispiel I-7

5 (I-7a)

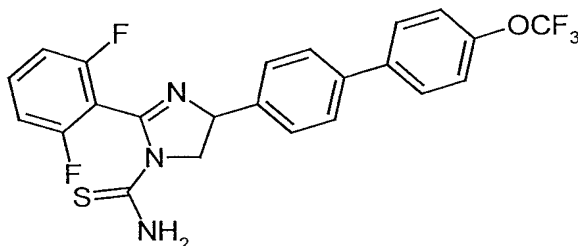
(I-7b)

(Verfahren C)

1,5 g (3,6 mmol) 4-(4'-Trifluormethoxy-4-biphenyl)-2-(2,6-difluorophenyl)-4,5-dihydro-1H-imidazol (z.B. aus Beispiel V-1) wurden in 20 ml Toluol gelöst, mit 1,7 ml
 10 (1,84 g; 18 mmol) Acetanhydrid versetzt und 1 h unter Rückfluß gekocht. Danach wurde eingeeengt und der Rückstand aus einer Mischung von Cyclohexan und Ethylacetat umkristallisiert. Es wurden 1,07 g (65 % d.Th.) 1-Acetyl-4-(4'-trifluormethoxy-4-biphenyl)-2-(2,6-difluorophenyl)-4,5-dihydro-1H-imidazol (I-7a) erhalten. 0,6 g Eindampfrückstand der Mutterlauge wurden säulenchromatographisch
 15 (Kieselgel; Ø = 3 cm, l = 30 cm; Cyclohexan : Ethylacetat = 5 : 1) aufgetrennt. Als zweite Fraktion wurden 0,12 g (7 % d.Th.) 3-Acetyl-4-(4'-trifluormethoxy-4-biphenyl)-2-(2,6-difluorophenyl)-4,5-dihydro-3H-imidazol (I-7b) als Öl erhalten.

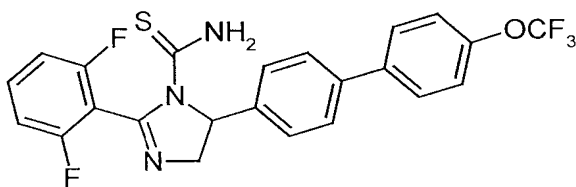
(I-7a): Schmp.: 109-111°C

(I-7b): ¹H-NMR (400 MHz, DMSO): δ [ppm] 1,9 (t, 3 H); 3,7 (m, 1H); 4,6 (m, 1H);
 20 5,6 (m, 1H); 7,2-7,9 (m, 11 H)

Beispiel I-8

(Verfahren D)

- 5 1,0 g (2,3 mmol) 1-Cyano-4-(4'-trifluormethoxy-4-biphenyl)-2-(2,6-difluorphenyl)-4,5-dihydro-1H-imidazol (z.B. aus Beispiel I-5, Verbindung I-5a) wurde in 15 ml Pyridin p.a. unter Argon vorgelegt. Bei Raumtemperatur wurde über 30 min Schwefelwasserstoff eingeleitet, 1,5 h nachgerührt und anschließend verbliebener Schwefelwasserstoff ausgetrieben. Zur Aufarbeitung wurde im Vakuum eingeeengt,
- 10 Toluol zugegeben und erneut eingeeengt. Der Rückstand von 1,2 g wurde chromatographisch gereinigt (Kieselgel; Ø = 3 cm, l = 30 cm; Gradient Cyclohexan : Ethylacetat 4 : 1 → 1 : 2). Das erhaltene, kristalline, bei 93-95°C schmelzende Produkt enthielt laut 2D-NMR-Spektrum und GC-MS neben 10 % gewünschtem 4-(4'-Tri-
- 15 fluormethoxy-4-biphenyl)-2-(2,6-difluorphenyl)-1-thiocarbamoyl-4,5-dihydro-1H-imidazol das nicht N-substituierte Imidazolin (V-1).

MS (CI): m/z: 477 (M⁺)Beispiel I-9

20 (Verfahren D)

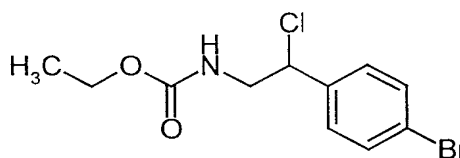
Analog Beispiel I-8 wurden aus 0,5 g (1,15 mmol) 3-Cyano-4-(4'-trifluormethoxy-4-biphenyl)-2-(2,6-difluorphenyl)-4,5-dihydro-3H-imidazol (z.B. aus Beispiel I-3,

Verbindung I-3b) 0,50 g Rohprodukt erhalten. Säulenchromatographie (Kieselgel Ø = 3 cm, l = 30 cm; Gradient Cyclohexan : Ethylacetat 8 : 1 → 2 : 1) lieferte 0,17 g *N*-substituiertes Imidazolin (V-1), das laut ¹H-NMR-Spektrum und GC-MS geringe Anteile des gewünschten 4-(4'-Trifluormethoxy-4-biphenylyl)-2-(2,6-difluorphenyl)-thiocarbamoyl-4,5-dihydro-3H-imidazols enthält.

5 MS (CI): m/z: 477 (M⁺)

Herstellung der Vorprodukte

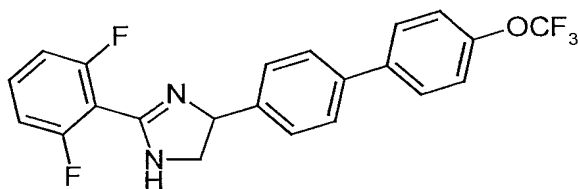
10 Beispiel II-1



9,8 ml (13,7 g, 0,075 mol) *p*-Bromstyrol wurden in 50 ml Acetonitril p.a. gelöst und ein Argonstrom übergeleitet. Bei 5 bis 10°C wurde eine Lösung von 12 g (0,075 mol) *N,N*-Dichlorcarbamidsäureethylester in 50 ml Acetonitril p.a. so langsam zugetropft, daß die Temperatur 10°C nicht überstieg. Anschließend wurde 3 h bei Raumtemperatur nachgerührt. Nach GC-Reaktionskontrolle (ca. 88 % Produkt) wurden unter Kühlung bei 5 bis 10°C 75 ml einer 20 %-igen Natriumbisulfit-Lösung zugesetzt (exotherme Reaktion). Nach Phasentrennung wurde die wäßrige Phase mit 2 x 20 ml Diethylether extrahiert. Die vereinigten organischen Phasen wurden mit gesättigter Kochsalzlösung und Wasser extrahiert, getrocknet und eingeeengt. Es wurden 22,10 g (96 % d. Th.) roher *N*-[2-(4-Bromphenyl)-2-chlorethyl]-carbamidsäureethylester erhalten, welcher direkt weiter umgesetzt wurde.

20

25 Schmp.: 61-62°C

Beispiel V-1

- 5 2 g (4,08 mmol) 4-(4'-Trifluormethoxy-4-biphenyl)-1-ethoxycarbonyl-2-(2,6-difluorophenyl)-4,5-dihydro-1H-imidazol (z.B. aus Beispiel II-2) wurden bei Raumtemperatur zu einer Lösung/Suspension von 1,1 g (20 mmol) Kaliumhydroxid in 15 ml Ethanol p. a. gegeben. Nach einer Stunde Rühren unter Rückflußkochen und Umsatzkontrolle per DC wurde abgekühlt, auf Wasser gegossen und mit tert.-Butylmethylether extrahiert. Nach Trocknung und Einengen der vereinigten Extrakte wurden 1,7 g Rohprodukt erhalten. Dieses wurde mit einer Mischung aus Dichlormethan und Cyclohexan verrührt und von den ausgefallenen Kristallen abgesaugt. Die Mutterlauge wurde eingeeengt und erneut mit einer kleineren Menge der Mischung verrührt und eine 2. Kristallfraktion gewonnen. Ausbeute: 1,00 g (60 % d.Th.) 4-(4'-Trifluormethoxy-4-biphenyl)-2-(2,6-difluorophenyl)-4,5-dihydro-1H-imidazol.
- 10
- 15
- Schmp.: 125-127°C

Anwendungsbeispiele

Beispiel A

5 Phaedon-Larven-Test

Lösungsmittel:	7 Gewichtsteile	Dimethylformamid
Emulgator:	1 Gewichtsteil	Alkylarylpolyglykolether

10 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15 Kohlblätter (*Brassica oleracea*) werden durch Tauchen in die Wirkstoffzubereitung der gewünschten Konzentration behandelt und mit Meerrettichblattkäfer-Larven (*Phaedon cochleariae*) besetzt, solange die Blätter noch feucht sind.

20 Nach der gewünschten Zeit wird die Abtötung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, daß alle Käfer-Larven abgetötet wurden; 0 % bedeutet, daß keine Käfer-Larven abgetötet wurden.

Bei diesem Test zeigten bei einer Wirkstoffkonzentration von 0,1 % nach 7 Tagen z.B. die Verbindungen aus Herstellbeispiel I-4, I-5a, I-5b, I-6a, I-6b und I-8 einen Abtötungsgrad von 100 %, aus Herstellbeispiel I-7a einen Abtötungsgrad von 90 %.

25

Beispiel B

Spodoptera frugiperda-Test

- 5 Lösungsmittel: 7 Gewichtsteile Dimethylformamid
Emulgator: 1 Gewichtsteil Alkylarylpolyglykolether

10 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15 Kohlblätter (Brassica oleracea) werden durch Tauchen in die Wirkstoffzubereitung der gewünschten Konzentration behandelt und mit Raupen des Heerwurmes (Spodoptera frugiperda) besetzt, solange die Blätter noch feucht sind.

Nach der gewünschten Zeit wird die Abtötung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, daß alle Raupen abgetötet wurden; 0 % bedeutet, daß keine Raupen abgetötet wurden.

20 Bei diesem Test zeigten bei einer Wirkstoffkonzentration von 0,1 % nach 7 Tagen z.B. die Verbindungen aus den Herstellbeispielen I-4, I-3, I-5a, I-5b, I-6a, I-7a und I-8 einen Abtötungsgrad von 100 %.

Beispiel C

Tetranychus-Test (OP-resistent/Tauchbehandlung)

5	Lösungsmittel:	7 Gewichtsteile	Dimethylformamid
	Emulgator:	1 Gewichtsteil	Alkylarylpolyglykolether

10 Zur Herstellung einer zweckmäßigen Wirkstoffzubereitung vermischt man 1 Gewichtsteil Wirkstoff mit der angegebenen Menge Lösungsmittel und Emulgator und verdünnt das Konzentrat mit emulgatorhaltigem Wasser auf die gewünschte Konzentration.

15 Bohnenpflanzen (*Phaseolus vulgaris*), die stark von allen Stadien der gemeinen Spinnmilbe (*Tetranychus urticae*) befallen sind, werden in eine Wirkstoffzubereitung der gewünschten Konzentration getaucht.

Nach der gewünschten Zeit wird die Wirkung in % bestimmt. Dabei bedeutet 100 %, daß alle Spinnmilben abgetötet wurden; 0 % bedeutet, daß keine Spinnmilben abgetötet wurden.

20 Bei diesem Test zeigten nach 7 Tagen z.B. die Verbindungen aus den Herstellbeispielen I-3, I-5a, I-5b, I-6a und I-7a bei einer Wirkstoffkonzentration von 0,01 % einen Abtötungsgrad von 100 % und aus Herstellungsbeispiel I-8 einen Abtötungsgrad von 95 %.

25

Beispiel D

Blowfly-Larven-Test / Entwicklungshemmende Wirkung

5 Testtiere: *Lucilia cuprina*-Larven

 Lösungsmittel: Dimethylsulfoxid

10 20 mg Wirkstoff werden in 1 ml Dimethylsulfoxid gelöst, geringere Konzentrationen werden durch Verdünnen mit dest. Wasser hergestellt.

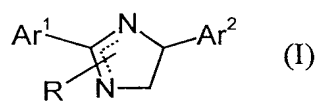
15 Etwa 20 *Lucilia cuprina*-Larven werden in ein Teströhrchen gebracht, welches ca. 1 cm³ Pferdefleisch und 0,5 ml der zu testenden Wirkstoffzubereitung enthält. Nach 24 und 48 Stunden wird die Wirksamkeit der Wirkstoffzubereitung ermittelt. Die Teströhrchen werden in Becher mit sandbedecktem Boden überführt. Nach weiteren 2 Tagen werden die Teströhrchen entfernt und die Puppen ausgezählt.

20 Die Wirkung der Wirkstoffzubereitung wird nach der Zahl der geschlüpften Fliegen nach 1,5-facher Entwicklungsdauer einer unbehandelten Kontrolle beurteilt. Dabei bedeutet 100 %, daß keine Fliegen geschlüpft sind; 0 % bedeutet, daß alle Fliegen normal geschlüpft sind.

Bei diesem Test zeigten die Verbindungen aus den Herstellbeispielen I-3 und I-4a bei einer Wirkstoffkonzentration von 100 ppm eine Wirkung von 100 %.

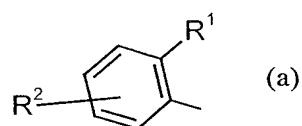
Patentansprüche

1. Verbindungen der Formel (I)



in welcher

Ar¹ für die Gruppierung (a)

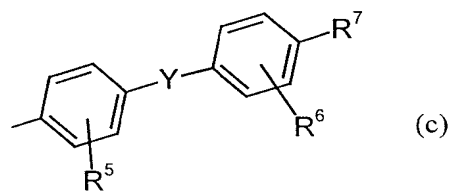
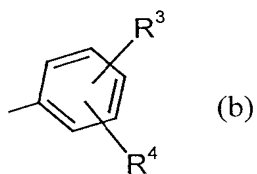


steht, in der

R¹ für Halogen, Alkyl, Alkoxy oder Halogenalkoxy steht und

R² für Wasserstoff, Halogen, Alkyl oder Alkoxy steht,

Ar² für die Gruppierungen (b) oder (c)



steht, in denen

R^3 , R^4 , R^5 und R^6 unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Halogen, Alkyl, Alkoxy, Halogenalkyl oder Halogenalkylthio stehen,

5 R^7 für Wasserstoff, Halogen, Cyano, Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Halogenalkyl, Halogenalkoxy oder Halogenalkylthio steht und

Y für eine direkte Bindung, Sauerstoff, Methylen, $-O-CH_2-$ oder $-CH_2O-$ steht und

10

R für Cyano, Alkoxyalkyl, Formyl, Alkylcarbonyl, Alkoxycarbonyl oder $-C(X)-NHR^8$ steht, worin

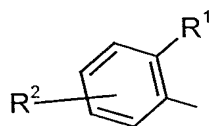
X für Sauerstoff oder Schwefel steht und

15

R^8 für Wasserstoff oder Alkyl steht.

2. Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher

20 Ar^1 für die Gruppierung (a)



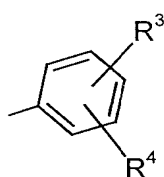
(a) steht, in der

R^1 für Halogen, C_1-C_3 -Alkyl, C_1-C_3 -Alkoxy oder C_1-C_3 -Halogenalkoxy steht und

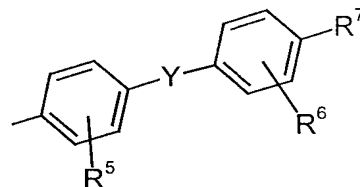
25

R^2 für Wasserstoff, Halogen, C_1-C_3 -Alkyl oder C_1-C_3 -Alkoxy steht,

Ar² für die Gruppierungen (b) oder (c)



(b)



(c) steht,

in denen

5

R³, R⁴, R⁵ und R⁶ unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Halogen, C₁-C₁₂-Alkyl oder C₁-C₁₂-Alkoxy stehen,

10

R⁷ für Wasserstoff, Halogen, Cyano, C₁-C₆-Alkyl, C₁-C₆-Alkoxy, C₁-C₆-Alkylthio, C₁-C₆-Halogenalkyl, C₁-C₄-Halogenalkoxy oder C₁-C₄-Halogenalkylthio steht,

Y für eine direkte Bindung oder Sauerstoff steht und

15

R für Cyano, C₁-C₄-Alkoxy-C₁-C₄-alkyl, C₁-C₄-Alkylcarbonyl, C₁-C₄-Alkoxycarbonyl oder -C(X)-NHR⁸ steht, worin

X für Sauerstoff oder Schwefel steht und

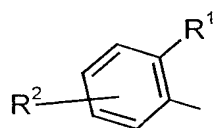
20

R⁸ für Wasserstoff oder C₁-C₄-Alkyl steht.

3. Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher

Ar¹ für die Gruppierung (a)

25

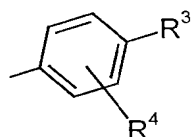


(a) steht, in der

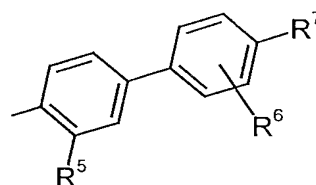
R¹ für Fluor, Chlor, Brom, Jod, C₁-C₃-Alkyl und C₁-C₃-Alkoxy steht und

5 R² für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, C₁-C₃-Alkyl oder C₁-C₃-Alkoxy steht,

Ar² für die Gruppierungen (b-a) oder (c-a)



(b-a)



(c-a) steht,

10

in denen

R³, R⁴, R⁵ und R⁶ unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, C₁-C₆-Alkyl oder C₁-C₆-Alkoxy stehen,

15

R⁷ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Iod, Cyano, C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy, C₁-C₄-Alkylthio, durch Fluor oder Chlor substituiertes C₁-C₄-Alkyl, C₁-C₄-Alkoxy oder C₁-C₄-Alkylthio steht,

20

R für Cyano, C₁-C₃-Alkoxy-C₁-C₃-alkyl, C₁-C₃-Alkylcarbonyl, C₁-C₂-Alkoxycarbonyl oder -C(X)-NHR⁸ steht, worin

25

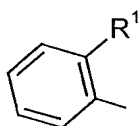
R⁸ für Wasserstoff oder C₁-C₄-Alkyl steht.

X für Sauerstoff oder Schwefel steht.

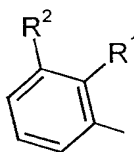
4. Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher

5

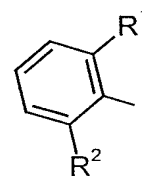
Ar¹ für die Gruppierungen (a-1), (a-2) oder (a-3)



(a-1)



(a-2)



(a-3) steht, in denen

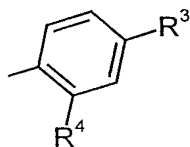
10

R¹ für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Methoxy oder Ethoxy steht und

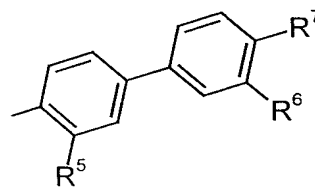
R² für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, Methoxy oder Ethoxy steht.

15

Ar² für die Gruppierungen (b-b) oder (c-b)



(b-b)



(c-b) steht,

20

in denen

R³, R⁴, R⁵ und R⁶ unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, Isobutyl, sec.-Butyl, tert.-Butyl, Pentyl, Hexyl,

Methoxy, Ethoxy, n-Propoxy, Isopropoxy, n-Butoxy, Isobutoxy, sec.-Butoxy, tert.-Butoxy, Pentyloxy oder Hexyloxy stehen,

5 R⁷ für Fluor, Chlor, Brom, Methyl, Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, Isobutyl, sec.-Butyl, tert.-Butyl, Methoxy, Ethoxy, n-Propoxy, Isopropoxy, n-Butoxy, Isobutoxy, sec.-Butoxy, tert.-Butoxy, Methylthio, Ethylthio, n-Propylthio, Isopropylthio, Difluormethyl, Trifluormethyl, Dichlormethyl, Trichlormethyl, 10 Difluormethoxy, Trifluormethoxy, Chlordifluormethoxy, 1,1-Difluorethoxy, 1,1,2-Trifluorethoxy, 1,1,2,2-Tetrafluorethoxy, 2-Chlor-1,1,2-trifluorethoxy, 2,2,2-Trichlor-1,1-difluorethoxy, Pentafluorethoxy, Difluormethylthio, Trifluormethylthio, Chlordifluormethylthio, 1,1-Difluorethylthio, 1,1,2-Trifluor- 15 ethylthio, 2,2,2-Trifluorethylthio, 1,1,2,2-Tetrafluorethylthio, 2-Chlor-1,1,2-trifluorethylthio, 2,2,2-Trichlor-1,1-difluorethylthio oder Pentafluorethylthio steht.

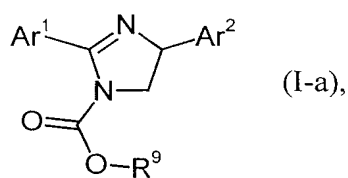
20 R für Cyano, Ethoxymethyl, Acetyl, Propionyl, Butyryl, Methoxycarbonyl, Ethoxycarbonyl oder -C(X)NHR⁸ steht, worin

R⁸ für Wasserstoff, Methyl oder Ethyl steht.

25 X für Sauerstoff oder Schwefel steht.

5. Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man

30 A) Diphenylimidazoline der Formel (I-a)



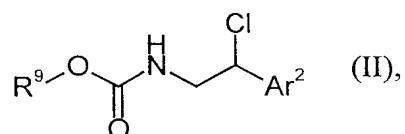
in welcher

Ar¹ und Ar² die oben angegebenen Bedeutungen haben und

5

R⁹ für C₁-C₄-Alkyl steht,

erhält, indem man β-Chlorcarbamate der Formel (II)



10

in welcher

Ar² und R⁹ die oben angegebenen Bedeutungen haben,

15

mit Benzonitrilen der Formel (III),



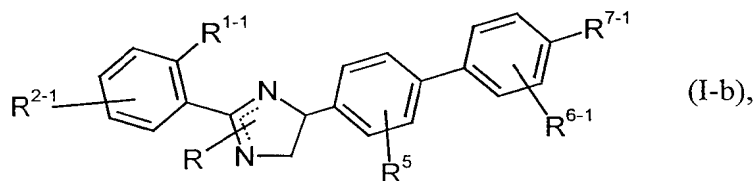
in welcher

20

Ar¹ die oben angegebenen Bedeutungen hat,

in Gegenwart von Schwefelsäure kondensiert, oder

B) Diphenylimidazoline der Formel (I-b)



in welcher

5

R die oben angegebenen Bedeutungen hat und

R¹⁻¹ für Fluor, Chlor, Alkyl, Alkoxy oder Halogenalkoxy steht,

10

R²⁻¹ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Alkyl oder Alkoxy steht,

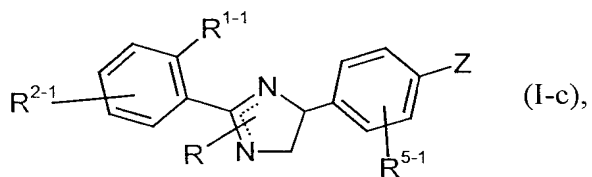
R⁵⁻¹ und R⁶⁻¹ unabhängig voneinander jeweils für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Alkyl, Alkoxy, Halogenalkyl oder Halogenalkylthio stehen und

15

R⁷⁻¹ für Wasserstoff, Fluor, Chlor, Cyano, Alkyl, Alkoxy, Alkylthio, Halogenalkyl oder Halogenalkylthio steht,

erhält, indem man Halogenverbindungen der Formel (I-c)

20



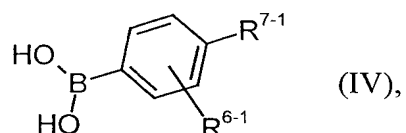
in welcher

R, R¹⁻¹, R²⁻¹ und R⁵⁻¹ die oben angegebenen Bedeutungen haben und

Z für Brom oder Iod steht,

mit Boronsäuren der Formel (IV)

5



in welcher

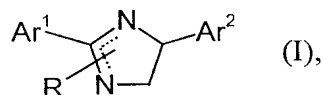
R⁶⁻¹ und R⁷⁻¹ die oben angegebenen Bedeutungen haben,

10

in Gegenwart eines Katalysators und gegebenenfalls in Gegenwart eines Säurebindemittels sowie gegebenenfalls in Gegenwart eines Verdünnungsmittels kuppelt, oder

15

C) Diphenylimidazoline der Formel (I)

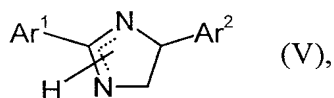


in welcher

20

Ar¹, Ar² und R die oben angegebenen Bedeutungen haben,

erhält, indem man am Stickstoff nicht substituierte Diphenylimidazoline der Formel (V)



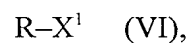
25

in welcher

Ar^1 und Ar^2 die oben angegebenen Bedeutungen haben,

5

mit Verbindungen der Formel (VI)



in welcher

10

R die oben angegebenen Bedeutungen hat und

X^1 für eine in Abhängigkeit vom Rest R geeignete Abgangsgruppe wie -Cl, -Br, -OSO₂OR¹⁰ oder -OR¹⁰ steht,

15

worin

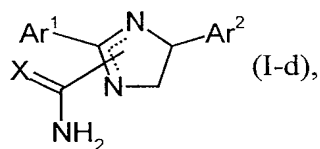
R¹⁰ für Alkyl oder Aryl steht,

gegebenenfalls in Gegenwart eines Reaktionshilfsmittels kondensiert,

20

oder

D) Diphenylimidazoline der Formel (I-d)

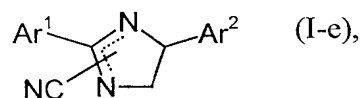


25

in welcher

Ar^1 , Ar^2 und X die oben angegebenen Bedeutungen haben,

erhält, indem man Nitrile der Formel (I-e)



in welcher

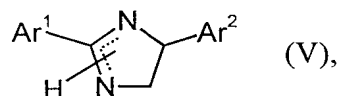
5

Ar¹ und Ar² die oben angegebenen Bedeutungen haben,

mit Wasser oder Schwefelwasserstoff gegebenenfalls in Gegenwart
eines Reaktionshilfsmittels umgesetzt.

10

6. Verbindungen der Formel (V)



in welcher

15

Ar¹ und Ar² die in Anspruch 1 angegebenen Bedeutungen haben.

7. Schädlingsbekämpfungsmittel, gekennzeichnet durch einen Gehalt an mindestens einer Verbindung der Formel (I) gemäß Anspruch 1.

20

8. Verwendung von Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1 zur Bekämpfung von Schädlingen.

9. Verfahren zur Bekämpfung von Schädlingen, dadurch gekennzeichnet, daß man Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1 auf Schädlinge und/oder ihren Lebensraum einwirken läßt.

25

10. Verfahren zur Herstellung von Schädlingsbekämpfungsmitteln, dadurch gekennzeichnet, daß man Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1 mit Streckmitteln und/oder oberflächenaktiven Mitteln vermischt.
- 5 11. Verwendung von Verbindungen der Formel (I) gemäß Anspruch 1 zur Herstellung von Schädlingsbekämpfungsmitteln.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PC1/EP 99/04682

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 C07D233/20 C07D233/22 A01N43/50

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 C07D A01N

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	EP 0 010 852 A (AMERICAN CYANAMID CO) 14 May 1980 (1980-05-14) cited in the application claims; example 3 ---	1-6
A	US 3 202 674 A (ANDRE L. LANGIS ET AL) 24 August 1965 (1965-08-24) cited in the application the whole document --- -/--	1-6



Further documents are listed in the continuation of box C.



Patent family members are listed in annex.

° Special categories of cited documents :

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

29 October 1999

Date of mailing of the international search report

09/11/1999

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Henry, J

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 99/04682

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>PEDRO MOLINA ET AL: "An iminophosphorane-mediated efficient synthesis of 2,5-disubstituted-4,5-dihydroimidazoles" SYNLETT., no. 10, 1995, pages 1031-1032, XP002119949 THIEME VERLAG, STUTTGART., DE ISSN: 0936-5214 cited in the application Siehe Seite 1031, Verbindung 6a, 6b, 6c</p> <p>---</p>	1-6
A	<p>T.HIYAMA ET AL: "Reaction of N-alkoxycarbonylaziridines with nitriles" TETRAHEDRON., vol. 29, 1973, pages 3137-3139, XP002119950 ELSEVIER SCIENCE PUBLISHERS, AMSTERDAM., NL ISSN: 0040-4020 cited in the application the whole document</p> <p>-----</p>	1-6

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 99/04682

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0010852 A	14-05-1980	US 4245102 A	13-01-1981
		AR 224631 A	30-12-1981
		AT 1527 T	15-09-1982
		AU 529069 B	26-05-1983
		AU 5092879 A	15-05-1980
		CA 1135270 A	09-11-1982
		US 4316038 A	16-02-1982
		JP 55081884 A	20-06-1980
<hr/>			
US 3202674 A	24-08-1965	NONE	
<hr/>			

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PC 1 / EP 99/04682

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 C07D233/20 C07D233/22 A01N43/50

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 C07D A01N

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie ^o	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 010 852 A (AMERICAN CYANAMID CO) 14. Mai 1980 (1980-05-14) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche; Beispiel 3 ---	1-6
A	US 3 202 674 A (ANDRE L. LANGIS ET AL) 24. August 1965 (1965-08-24) in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument --- -/-	1-6



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

^o Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

29. Oktober 1999

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

09/11/1999

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Henry, J

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie°	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	<p>PEDRO MOLINA ET AL: "An iminophosphorane-mediated efficient synthesis of 2,5-disubstituted-4,5-dihydroimidazoles" SYNLETT., Nr. 10, 1995, Seiten 1031-1032, XP002119949 THIEME VERLAG, STUTTGART., DE ISSN: 0936-5214 in der Anmeldung erwähnt Siehe Seite 1031, Verbindung 6a, 6b, 6c -----</p>	1-6
A	<p>T.HIYAMA ET AL: "Reaction of N-alkoxycarbonylaziridines with nitriles" TETRAHEDRON., Bd. 29, 1973, Seiten 3137-3139, XP002119950 ELSEVIER SCIENCE PUBLISHERS, AMSTERDAM., NL ISSN: 0040-4020 in der Anmeldung erwähnt das ganze Dokument -----</p>	1-6

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/04682

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0010852 A	14-05-1980	US 4245102 A	13-01-1981
		AR 224631 A	30-12-1981
		AT 1527 T	15-09-1982
		AU 529069 B	26-05-1983
		AU 5092879 A	15-05-1980
		CA 1135270 A	09-11-1982
		US 4316038 A	16-02-1982
		JP 55081884 A	20-06-1980
<hr/>			
US 3202674 A	24-08-1965	KEINE	
<hr/>			